

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2004 年 4 月 29 日 (29.04.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/035640 A1

(51) 国際特許分類: C08F 210/18, 8/00, A61K 7/00

(21) 国際出願番号: PCT/JP2003/013265

(22) 国際出願日: 2003 年 10 月 16 日 (16.10.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願 2002-302202  
2002 年 10 月 16 日 (16.10.2002) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒105-7117 東京都港区東新橋一丁目 5 番 2 号 Tokyo (JP). 信越化学工業株式会社 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒100-0004 東京都千代田区大手町二丁目 6 番 1 号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 豊田 英雄 (TOYODA, Hideo) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県袖ヶ浦市長浦 5 8 0-3 2 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 宇於崎 浩隆 (UOSAKI, Hirofuka) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県袖ヶ浦市長浦 5 8 0-3 2 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 菅 広次郎 (KAN, Koujiro) [JP/JP]; 〒299-0265 千葉県袖ヶ浦市長浦 5 8 0-3 2 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 一戸 省二 (ICHINOHE, Shoji) [JP/JP]; 〒379-0224 群馬県碓氷郡松井田町大字人見 1 番地 1 0

信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内 Gunma (JP). 清水 徹 (SHIMIZU, Toru) [JP/JP]; 〒100-0004 東京都千代田区大手町二丁目 6 番 1 号 信越化学工業株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 鈴木 俊一郎 (SUZUKI, Shunichiro); 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁目 1 3 番 6 号 五反田山崎ビル 6 階 鈴木国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:  
一 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: OLEFIN WAX, SILICONE-MODIFIED OLEFIN WAXES, SILICONE -BASE COLD-SETTING COMPOSITIONS MADE BY USING THE SAME, AND COSMETICS CONTAINING THE SAME

(54) 発明の名称: オレフィン系ワックス、ならびにシリコン変性オレフィン系ワックス、これを用いたシリコン系室温固化組成物、およびこれらを用いた化粧料

(57) Abstract: An olefin wax (A) satisfying the following requirements: (i) the wax consists of a copolymer (A1) of ethylene and at least one diene or a copolymer (A2) of ethylene, at least one  $\alpha$ -olefin having 3 to 12 carbon atoms, and at least one diene, (ii) the number of unsaturated groups contained per molecule is 0.5 to 3.0, (iii) the density is 870 to 980 kg/m<sup>3</sup>, (iv) the melting point is 70 to 130°C, (v) the number-average molecular weight is 400 to 5,000, and (vi) the ratio (Mw/Mn) of weight-average molecular weight to number-average molecular weight is 4.0 or below; silicone-modified olefin waxes obtained by reacting the olefin wax (A) with hydrogen silicone; and cosmetics containing the silicone-modified olefin waxes.

[続葉有]



---

(57) 要約:

- (i) エチレンと少なくとも1種のジエンとの共重合体 (A1) またはエチレン、少なくとも1種の炭素数3~12の $\alpha$ -オレフィン、少なくとも1種のジエンとの共重合体 (A2) であり、
- (ii) 1分子あたりの不飽和基含有量が0.5~3.0個であり、
- (iii) 密度が870~980kg/m<sup>3</sup>であり、
- (iv) 融点が70~130℃であり、
- (v) 数平均分子量が400~5,000であり、
- (vi) 重量平均分子量と数平均分子量との比 ( $M_w / M_n$ ) が4.0以下である、

オレフィン系ワックス (A)。

オレフィン系ワックス (A) とヒドロジェンシリコーンとを反応させて得られるシリコーン変性オレフィン系ワックス。

このシリコーン変性オレフィン系ワックスを含有する化粧料。

## 明 細 書

オレフィン系ワックス、ならびにシリコーン変性オレフィン系ワックス、  
これを用いたシリコーン系室温固化組成物、およびこれらを用いた化粧料

5

### 技術分野

本発明は、オレフィン系ワックスおよびこれから得られるシリコーン変性オ  
レフィン系ワックスに関する。また本発明は、このシリコーン変性オレフィン  
系ワックスを含有するシリコーン系室温固化組成物、ならびにシリコーン変性  
10 オレフィン系ワックスおよび／またはシリコーン系室温固化組成物を用いた化  
粧料に関する。さらに詳しくは、特定のシリコーン変性オレフィン系ワックス  
を含有し、それによって軽い延びとさっぱりした使用感、そして汗や水に強い  
撥水性を有するとともに、塗布により、柔軟性、平滑性、エモリエント効果を  
付与し、自然なつやを与えるという効果に優れ、良好な経時安定性を有する化  
15 粧料に関する。

### 背景技術

シリコーン変性オレフィン系ワックスの合成において、従来、酸化ポリエチ  
レンワックス、酸無水物変性ポリエチレンワックス、片末端にカルボキシル基  
20 を有するポリエチレンオリゴマー等の種々のポリエチレンオリゴマーを用いる  
ことが検討されてきた。

しかしながら、酸化ポリエチレンワックスを使用する場合には、このワック  
ス1分子中のカルボキシル基が1個未満であるために、シリコーンで変性して  
も均一なシリコーン変性ポリエチレンワックスを得ることができないという欠

- 点があった。また、酸無水物変性ポリエチレンワックスを使用する場合には、このワックスに二重結合含有エポキシ化合物を反応させ、次いで触媒の存在下で水素化シリコーンを付加反応させる。しかしながら、この場合、付加反応の際に、付加反応用原料として複数の二重結合が導入されたポリエチレンワックスを使用するため、このポリエチレンワックスに反応させる水素化シリコーンとして、1分子中にSi-H結合を1個だけ有する高価な水素化シリコーンを使用しなければ、反応後に得られるシリコーンワックスが架橋してゲル化するという欠点があった。また、片末端にカルボキシル基を有するポリエチレンオリゴマーを使用する場合には、通常その純度は約80%と低いために、高純度のシリコーン変性ポリエチレンワックスを得ることができず、また、純度の高い片末端にカルボキシル基を有するポリエチレンオリゴマーはその分子量が400程度と小さいために、このようなポリエチレンオリゴマーを使用すると十分にワックスとしての性能を発揮することができないという欠点があった。
- そこで、シリコーン変性オレフィン系ワックスの合成に使用できるオレフィン系ワックスおよびそれを使用したフリーなシリコーンを含有しない高純度のシリコーン変性ポリエチレンワックスの開発が望まれていた。
- 一方、従来から化粧品として、柔軟性や平滑性を与え、エモリエント効果を付与する目的で、パラフィン、エステル、高級アルコール、グリセライドなどの液体油を含有したものが用いられている。しかしながら、従来の化粧品は、油っぽさやべたつき、油膜感が避けられなかった。そこで、油っぽさやべたつき、油膜感を抑えるために、ジメチルポリシロキサンなどのシリコーン油を配合した化粧品も知られている。

しかしながら、シリコーン油は、軽い延びと、より優れた平滑性、撥水性を



有する反面、炭化水素系の液体油との相溶性が悪く、また表面張力が低いため  
に素早く拡散して、持続性に乏しいという欠点があった。このため、シリコー  
ン油を固形化する試みもされている。シリコーン油を固形状にする素材として  
は、シリコーン鎖にアルキル基を導入した化合物（特開平２－６４１１５号公  
5 報）、シリコーン鎖に炭素数が２１～３０の脂肪族アルコールまたは酸のエステ  
ル官能基を導入した化合物（特開平１０－５００４３１号公報）、アクリレート  
シリコーン（特開平２－１３２１４１号公報）などが提案されている。しかし  
ながら、シリコーン鎖にアルキル基や長鎖脂肪族エステル基を導入した化合物  
では、シリコーン油自身を滑らかに固化することは難しく、液体油剤であるエ  
10 ステル油、トリグリセライド油、パラフィン油等を共存させてワックス類との  
親和性を向上させることにより固化するのが一般的である。また、アクリレー  
トシリコーンでは、シリコーン油単独でも固化物を形成するが、その固化物は  
樹脂状となり化粧品で要求される滑らかさに欠けるものであった。すなわち、  
シリコーン油の特性を充分に発揮した固形物で、滑らかさの点で十分に満足す  
15 ることのできるものは未だ得られていないのが実状である。

#### 発明の目的

本発明は、シリコーン変性オレフィン系ワックスの合成に使用できるオレフ  
イン系ワックスおよびそれをハイドロジェンシリコーンと反応させた高純度の  
20 シリコーン変性ポリオレフィンワックスを提供することを目的としている。ま  
た、このシリコーン変性ポリオレフィンワックスを含有する化粧料を提供する  
ことも目的としている。この化粧料は、上記シリコーン変性ポリオレフィンワ  
ックスを含有することにより、塗布時のべたつきや重さ（重量感）がなく、ま  
た、さらさらして延び広がりも軽く、後肌もさらっとしたなめらかな感触を有

するなど軽い延びとさっぱりした使用感を有し、さらに汗や水に強い撥水性を有するとともに、塗布により、水分の蒸散を適度に損なうことなく、柔軟性、平滑性、エモリエント効果を付与し、自然なつやを与えるなど、使用性に優れ、良好な経時安定性を有する化粧料である。

5

#### 発明の開示

本発明者は、これらの課題を解決するために鋭意検討した結果、シリコーン変性オレフィン系ワックスの合成に使用できるオレフィン系ワックスおよびそれをハイドロジェンシリコーンと反応させた高純度のシリコーン変性ポリオレフィン系ワックスを開発し、さらに、このシリコーン変性ポリオレフィンワックスを化粧料に配合することにより、油剤、特にシリコーン油を滑らかな固形状にすることができるとともに、上記特性を有する化粧料が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

- すなわち、本発明に係るオレフィン系ワックス (A) は、
- 15 (i) エチレンと少なくとも1種のジエンとを共重合して得られる共重合体 (A1)、またはエチレンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンから選ばれる少なくとも1種のオレフィンと少なくとも1種のジエンとを共重合して得られる共重合体 (A2) であり、
- (ii) 1分子あたりの不飽和基含有量が0.5～3.0個であり、
- 20 (iii) 密度が870～980 kg/m<sup>3</sup>であり、
- (iv) 融点が70～130℃であり、
- (v) 数平均分子量が400～5,000であり、
- (vi) 重量平均分子量と数平均分子量との比 ( $M_w/M_n$ ) が4.0以下であることを特徴としている。

また、本発明に係るオレフィン系ワックス (A) は、

- (i) エチレンとビニルノルボルネン (5-ビニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン) とを共重合して得られる共重合体 (A 3)、またはエチレンと炭素数 3~12 の  $\alpha$ -オレフィンから選ばれる少なくとも1種のオレフィンとビニルノルボルネンとを共重合して得られる共重合体 (A 4) であり、
- (ii) 1分子あたりの不飽和基含有量が 0.5~2.0 個であり、
- (iii) 密度が 900~980 kg/m<sup>3</sup> であり、
- (iv) 融点が 100~130℃ であり、
- (v) 数平均分子量が 400~5,000 であり、
- 10 (vi) 重量平均分子量と数平均分子量との比 ( $M_w/M_n$ ) が 4.0 以下であることが好ましい。

前記オレフィン系ワックス (A) はメタロセン系触媒を用いて製造されたものであることが好ましい。

- 本発明に係るシリコーン変性オレフィン系ワックス (B) は、上記いずれかのオレフィン系ワックス (A) と1分子に1個以上の Si-H 結合を有するハイドロジェンシリコーンとを、触媒存在下で付加反応させることにより得られることを特徴としている。
- 15

- 本発明に係るシリコーン系室温固化組成物 (D) は、上記シリコーン変性オレフィン系ワックス (B) 5~95 質量%と油剤 (C) 95~5 質量%とからなることを特徴としている。
- 20

本発明に係る化粧料は、上記シリコーン変性オレフィン系ワックス (B) および/または上記シリコーン系室温固化組成物 (D) を含有することを特徴としている。

前記油剤 (C) の少なくとも一部は常温で液状であることが好ましく、また、

前記油剤（C）の少なくとも一部が融点50度以上の固形油剤であることも好ましい。

前記油剤（C）の少なくとも一部は、下記式



- 5 （式中、 $R^1$ は、水素原子、炭素数1～30のアルキル基もしくはフッ素置換アルキル基、炭素数6～30のアリール基、または炭素数7～30アラルキル基を表し、 $a$ は $0 \leq a \leq 2.5$ である。）

で示される直鎖状、分岐状または環状のシリコン油であることが好ましい。

- また、前記油剤（C）の少なくとも一部はフッ素原子またはアミノ基を有する  
10 ことも好ましい。

本発明に係る化粧料は、さらに、水（E）を含有することが好ましく、分子構造中にアルコール性水酸基を有する化合物（F）を含有することも好ましい。分子構造中にアルコール性水酸基を有する前記化合物（F）は、水溶性の一価のアルコールおよび／または水溶性の多価アルコールであることが好ましい。

- 15 また、本発明に係る化粧料は、さらに、（G）水溶性または水膨潤性高分子を含有することが好ましく、粉体（H1）および／または着色剤（H2）を含有することも好ましい。前記粉体（H1）および／または着色剤（H2）の少なくとも一部は、ジメチルポリシロキサンを架橋した構造を有する架橋型球状ジメチルポリシロキサン微粉末、架橋型球状ポリメチルシルセスキオキサン微粉  
20 末、疎水化シリカ、または架橋型球状ポリシロキサングム表面をポリメチルシルセスキオキサン粒子で被覆して得られる微粉末であることが好ましい。また、前記粉体（H1）および／または着色剤（H2）の少なくとも一部は、フッ素原子を有することも好ましい。

本発明に係る化粧料は、さらに、界面活性剤（I）を含有することが好まし

い。前記界面活性剤（I）は、分子中にポリオキシアルキレン鎖を有する直鎖状もしくは分岐状のシリコーンおよび／またはポリグリセリン鎖を有する直鎖状もしくは分岐状のシリコーンであることが好ましい。また、前記界面活性剤（I）の親水性－親油性バランス（HLB）は2～8であることも好ましい。

- 5     本発明に係る化粧料は、さらに、架橋型オルガノポリシロキサン（J）を含有することが好ましい。前記架橋型オルガノポリシロキサン（J）は、粘度が0.65～10.0 mm<sup>2</sup>/秒（25℃）の低粘度シリコーンを自重以上の量を含んで膨潤する架橋型オルガノポリシロキサンであることが好ましい。また、前記架橋型オルガノポリシロキサン（J）は、該オルガノポリシロキサン（J）
- 10    のケイ素原子に直接結合した水素原子と分子中に2つ以上のビニル性反応部位を有する架橋剤とが反応することにより、架橋構造を形成し得ることも好ましい。さらに、前記架橋型オルガノポリシロキサン（J）は、ポリオキシアルキレン、ポリグリセリン、アルキル、アルケニル、アリールおよびフルオロアルキルからなる群から選択される少なくとも1つの部位を架橋分子中に含有する
- 15    ことも好ましい。

- 本発明に係る化粧料は、さらに、シリコーン樹脂（K）を含有することが好ましい。前記シリコーン樹脂（K）はアクリルシリコーン樹脂であることが好ましく、ピロリドン、長鎖アルキル、ポリオキシアルキレン、フルオロアルキルおよびカルボン酸などのアニオンからなる群から選択される少なくとも1つ
- 20    の部位を分子中に含有するアクリルシリコーン樹脂であることがより好ましい。また、前記シリコーン樹脂（K）は、1官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物（MQ）、1官能性シロキシ基と2官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物（MDQ）、1官能性シロキシ基と3官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物（M

T)、1官能性シロキシ基と2官能性シロキシ基と3官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物(MD T)、および1官能性シロキシ基と2官能性シロキシ基と3官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物(MD T Q)から選択されるシリコーン網状化合物であることも好ましい。  
5 い。さらに、前記シリコーン樹脂(K)が、ピロリドン、長鎖アルキル、ポリオキシアルキレン、フルオロアルキルおよびアミノ基からなる群から選択される少なくとも1つの部位を分子中に含有するシリコーン網状化合物であることも好ましい。

本発明に係るスキンケア化粧料、メイクアップ化粧料、頭髮化粧料、制汗剤  
10 化粧料および紫外線防御化粧料は、構成成分の少なくとも一部として、上記いずれかの化粧料を含有することを特徴としている。

また、本発明に係る化粧料は、その形状が、液状、乳液状、クリーム状、固形状、ペースト状、ゲル状、粉末状、プレス状、多層状、ムース状、スプレー状、スティック状またはペンシル状であることを特徴としている。

15

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係るオレフィン系ワックス、シリコーン変性オレフィン系ワックス、シリコーン系室温固化組成物および化粧料について具体的に説明する。

#### <オレフィン系ワックス>

20 オレフィン系ワックスは、たとえば後述するようなメタロセン触媒を用いて、オレフィンとジエンとを共重合することにより得ることができる。

(オレフィン)

オレフィン系ワックスの製造に用いられるオレフィンとしては、エチレンおよび炭素原子数3~12の $\alpha$ -オレフィンが挙げられる。

炭素原子数 3 ～ 12 の  $\alpha$ -オレフィンとしては、たとえば、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、3-メチル-1-ブテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセンなどが挙げられる。これらのうち、好ましくは炭素原子数 3 ～ 10 の  $\alpha$ -オレフィン、より好ましくは炭素原子数 3 ～ 8 の  $\alpha$ -オレフィン、特に好ましくはプロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテンが望ましい。

(ジエン)

ジエンとしては、ブタジエン、イソプレン、4-メチル-1, 3-ペンタジエン、1, 3-ペンタジエン、1, 4-ペンタジエン、1, 5-ヘキサジエン、1, 4-ヘキサジエン、1, 3-ヘキサジエン、1, 3-オクタジエン、1, 4-オクタジエン、1, 5-オクタジエン、1, 6-オクタジエン、1, 7-オクタジエン、エチリデンノルボルネン、ビニルノルボルネン (5-ビニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン)、ジシクロペンタジエン、2-メチル-1, 4-ヘキサジエン、2-メチル-1, 6-オクタジエン、7-メチル-1, 6-オクタジエン、4-エチリデン-8-メチル-1, 7-ノナジエン、5, 9-ジメチル-1, 4, 8-デカトリエンなどが挙げられる。これらのなかでは、ビニルノルボルネン、エチリデンノルボルネン、ジシクロペンタジエン、1, 4-ヘキサジエン、ブタジエン、イソプレン、2-メチル-1, 4-ヘキサジエンまたは2-メチル-1, 6-オクタジエンが好ましい。

オレフィン系ワックスは、上記のようなオレフィンとジエンとを共重合して得られるが、本発明に係るオレフィン系ワックス (A) は、エチレンとジエンとの共重合体、またはエチレンと炭素原子数 3 ～ 12 の  $\alpha$ -オレフィンから選ばれる少なくとも 1 種の  $\alpha$ -オレフィンとジエンとの共重合体であることが好

ましい。

オレフィン系ワックス (A) は、ジエンから導かれる構成単位を 0.01 ~ 2.0 モル%、好ましくは 0.1 ~ 0.7 モル% の割合で含有することが望ましい。また、オレフィン系ワックス (A) が炭素原子数 3 ~ 12 の  $\alpha$ -オレフィンから導かれる構成単位を含有する場合は、その含有率は 0.01 ~ 2.0  
5 モル%、好ましくは 0.1 ~ 0.7 モル% が望ましい。

オレフィン系ワックス (A) が、ジエンから導かれる構成単位を上記の範囲の割合で含有すると、重合活性も適度に高く、かつ適度な固さのシリコーン系室温固化組成物を得ることができる。また、炭素原子数 3 ~ 12 の  $\alpha$ -オレフィンから導かれる構成単位を上記の範囲の割合で含有すると、適度な固さのシリコーン系室温固化組成物を得ることができる。  
10

オレフィン系ワックス (A) は、平均で 0.5 ~ 3.0 / 分子、好ましくは 0.5 ~ 2.0 個 / 分子、より好ましくは 1.0 ~ 2.0 個 / 分子の範囲にある不飽和基含有量を有することが望ましい。オレフィン系ワックス (A) 中の不飽和基含有量が上記範囲内にあると、すべてのオレフィン系ワックス (A) にシリコーンが付加できるため、少ないシリコーン変性オレフィン系ワックスでシリコーン系室温固化組成物を得ることができる。  
15

なお、オレフィン系ワックス中の不飽和基含有量は、以下のようにして測定される。 $^{13}\text{C}$ -NMR による不飽和部分の炭素のピーク面積と全炭素のピーク面積とを比較することにより、1,000 炭素あたりの不飽和基数  $M$  を得ることができる。1 分子あたりの不飽和基含有量は、数平均分子量  $M_n$  を用いて、 $M_n \times M / 14,000$  により算出することができる。本発明において、1,000 炭素あたりの不飽和基数  $M$  は、1.4 ~ 70 個、好ましくは 2.8 ~ 35 個、より好ましくは 4 ~ 30 個が望ましい。  
20



オレフィン系ワックス (A) は、密度勾配管法で測定した密度が  $870 \text{ kg/m}^3$  以上、好ましくは  $880 \text{ kg/m}^3$  以上、より好ましくは  $900 \text{ kg/m}^3$  以上、かつ、 $980 \text{ kg/m}^3$  以下、好ましくは  $970 \text{ kg/m}^3$  以下、より好ましくは  $950 \text{ kg/m}^3$  以下、特に好ましくは  $920 \text{ kg/m}^3$  以下である

- 5    ことが望ましい。オレフィン系ワックス (A) の密度が上記範囲内にあると、適度な固さのシリコン系室温固化組成物を得ることができる。

- オレフィン系ワックス (A) は、示差走査熱量計 (DSC) で測定した融点  
が  $70^\circ\text{C}$  以上、好ましくは  $80^\circ\text{C}$  以上、より好ましくは  $90^\circ\text{C}$  以上、特に好ま  
しくは  $100^\circ\text{C}$  以上、かつ、 $140^\circ\text{C}$  以下、好ましくは  $130^\circ\text{C}$  以下、より好  
10    ましくは  $120^\circ\text{C}$ 、特に好ましくは  $110^\circ\text{C}$  以下であることが望ましい。オレ  
フィン系ワックス (A) の融点が上記範囲内にあると、適度な固さのシリ  
コン系室温固化組成物を得ることができる。

- オレフィン系ワックス (A) は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー  
(GPC) で測定した数平均分子量 ( $M_n$ ) が  $400 \sim 5,000$ 、好ましく  
15    は  $800 \sim 5,000$ 、より好ましくは  $1,000 \sim 3,000$ 、特に好ましく  
は  $1,500 \sim 2,500$  の範囲にあることが望ましい。オレフィン系ワッ  
クス (A) の  $M_n$  が上記範囲内にあると、適度な固さのシリコン系室温固化組  
成物を得ることができる。

- オレフィン系ワックス (A) は、GPC で測定した重量平均分子量と数平均  
20    分子量との比 ( $M_w/M_n$ ) が  $4.0$  以下、好ましくは  $3.5$  以下、より好ま  
しくは  $3.0$  以下であることが望ましい。

なお、重量平均分子量 ( $M_w$ )、数平均分子量 ( $M_n$ ) は、ゲルパーミエー  
ションクロマトグラフィー (GPC) により測定される、ポリスチレン換算値で  
ある。ここで、GPC による測定は、温度:  $140^\circ\text{C}$ 、溶媒: オルトジクロロ

ベンゼンの条件下で行う。

オレフィン系ワックス (A) は、針入硬度が 1.5 dmm 以下、好ましくは 1.0 dmm 以下、より好ましくは 0.3 dmm 以下、特に好ましくは 0.1 dmm 以下であることが望ましい。なお、針入硬度は JIS K 2207 に準拠して測定することができる。オレフィン系ワックス (A) の針入硬度が上記範囲内にあると、適度な固さのシリコン系室温固化組成物を得ることができる。

本発明に係るオレフィン系ワックス (A) は、(ii) 不飽和基含有量が 0.5 ~ 3.0 個/分子であり、(iii) 密度が 870 ~ 980 kg/m<sup>3</sup> であり、(iv) 融点が 70 ~ 130 °C であり、(v) 数平均分子量 (Mn) が 400 ~ 5,000 であり、(vi) Mw/Mn (Mw : 重量平均分子量) が 4.0 以下であることが望ましい。また、(vii) 針入硬度が 1.5 dmm 以下であることも望ましい。

また、本発明に係るオレフィン系ワックス (A) がジエンとしてビニルノルボルネン (5-ビニルビシクロ [2.2.1] ヘプト-2-エン) を用いて共重合されたものである場合、このオレフィン系ワックス (A) は、(ii) 不飽和基含有量が 0.5 ~ 2.0 個/分子であり、(iii) 密度が 900 ~ 980 kg/m<sup>3</sup> であり、(iv) 融点が 100 ~ 130 °C であり、(v) 数平均分子量 (Mn) が 400 ~ 5,000 であり、(vi) Mw/Mn (Mw : 重量平均分子量) が 4.0 以下であることが望ましい。また、(vii) 針入硬度が 1.5 dmm 以下であることも望ましい。

上述したようなオレフィン系ワックス (A) は、たとえば周期表第 4 族から選ばれる遷移金属のメタロセン化合物と有機アルミニウムオキシ化合物および/またはイオン化イオン性化合物とからなる、以下のようなメタロセン系触媒を用いて製造することができる。

<メタロセン系触媒>

(メタロセン化合物)

メタロセン系触媒を形成するメタロセン化合物は、周期表第4族から選ばれる遷移金属のメタロセン化合物であり、具体的な例としては下記式(1)で表  
5 される化合物が挙げられる。



ここで、 $M^1$ は周期表第4族から選ばれる遷移金属、 $x$ は遷移金属 $M^1$ の原子価、 $L$ は配位子である。 $M^1$ で示される遷移金属の例としては、ジルコニウム、チタン、ハフニウムなどが挙げられる。 $L$ は遷移金属 $M^1$ に配位する配位子で  
10 あって、そのうち少なくとも1個の配位子 $L$ はシクロペンタジエニル骨格を有する配位子である。このシクロペンタジエニル骨格を有する配位子は置換基を有していてもよい。シクロペンタジエニル骨格を有する配位子 $L$ としては、たとえば、シクロペンタジエニル基；メチルシクロペンタジエニル基、エチルシクロペンタジエニル基、 $n$ -または*i*-プロピルシクロペンタジエニル基、 $n$ -  
15 -、*i*-、*sec*-または*tert*-ブチルシクロペンタジエニル基、ジメチルシクロペンタジエニル基、メチルプロピルシクロペンタジエニル基、メチルブチルシクロペンタジエニル基、メチルベンジルシクロペンタジエニル基等のアルキルまたはシクロアルキル置換シクロペンタジエニル基；インデニル基；4, 5, 6, 7-テトラヒドロインデニル基；フルオレニル基などが挙げられる。この  
20 シクロペンタジエニル骨格を有する配位子 $L$ の水素は、ハロゲン原子またはトリアルキルシリル基などで置換されていてもよい。

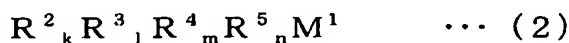
上記のメタロセン化合物が、配位子 $L$ としてシクロペンタジエニル骨格を有する配位子を2個以上有する場合には、そのうち2個のシクロペンタジエニル骨格を有する配位子同士が、エチレン、プロピレン等のアルキレン基；イソプ

ロピリデン、ジフェニルメチレン等の置換アルキレン基；シリレン基またはジメチルシリレン基、ジフェニルシリレン基、メチルフェニルシリレン基等の置換シリレン基などを介して結合されていてもよい。

シクロペンタジエニル骨格を有する配位子以外の配位子（シクロペンタジエニル骨格を有しない配位子）Lとしては、炭素原子数1～12の炭化水素基、アルコキシ基、アリーロキシ基、スルホン酸含有基（ $-\text{SO}_3\text{R}^1$ ）、ハロゲン原子または水素原子などが挙げられる。ここで、 $\text{R}^1$ はアルキル基、ハロゲン原子で置換されたアルキル基、アリール基、ハロゲン原子で置換されたアリール基またはアルキル基で置換されたアリール基である。

#### 10 (メタロセン化合物の例－1)

上記式（1）で表されるメタロセン化合物が、たとえば遷移金属の原子価が4である場合（ $x=4$ ）、より具体的には下記式（2）で表される。



ここで、 $\text{M}^1$ は周期表第4族から選ばれる遷移金属、 $\text{R}^2$ はシクロペンタジエニル骨格を有する基（配位子）、 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$ および $\text{R}^5$ はそれぞれ独立にシクロペンタジエニル骨格を有する基または有しない基（配位子）である。 $k$ は1以上の整数であり、 $k+l+m+n=4$ である。

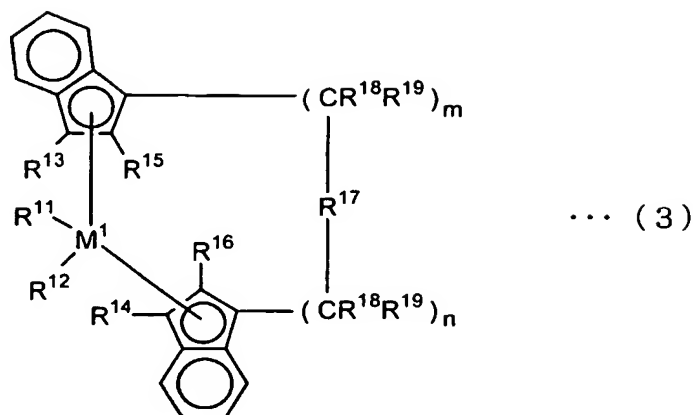
上記式（2）において、 $\text{M}^1$ がジルコニウムであり、かつシクロペンタジエニル骨格を有する配位子を少なくとも2個含むメタロセン化合物としては、たとえば、ビス（シクロペンタジエニル）ジルコニウムモノクロリドモノハイドライド、ビス（シクロペンタジエニル）ジルコニウムジクロリド、ビス（1-メチルー3-ブチルシクロペンタジエニル）ジルコニウムビス（トリフルオロメタンスルホナト）、ビス（1,3-ジメチルシクロペンタジエニル）ジルコニウムジクロリドなどが挙げられる。これらの化合物において1,3-位置換シ

クロペンタジエニル基を1, 2-位置換シクロペンタジエニル基に置き換えた化合物も用いることができる。

- また、メタロセン化合物として、上記式(2)において、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$ および $R^5$ のうち少なくとも2個の基、たとえば $R^2$ および $R^3$ が、シクロペンタジエニル骨格を有する基(配位子)であり、この少なくとも2個の基がアルキレン基、置換アルキレン基、シリレン基または置換シリレン基などを介して結合されているブリッジタイプのメタロセン化合物を使用することもできる。このとき、 $R^4$ および $R^5$ は、それぞれ独立に、前述したシクロペンタジエニル骨格を有する配位子以外の配位子Lと同様のものである。
- 10    このようなブリッジタイプのメタロセン化合物としては、エチレンビス(インデニル)ジメチルジルコニウム、エチレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、イソプロピリデン(シクロペンタジエニル-フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジフェニルシリレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド、メチルフェニルシリレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロリドなどが挙げられる。
- 15

(メタロセン化合物の例-2)

メタロセン化合物の例としては、下記式(3)で表される特開平4-268307号公報に記載のメタロセン化合物が挙げられる。



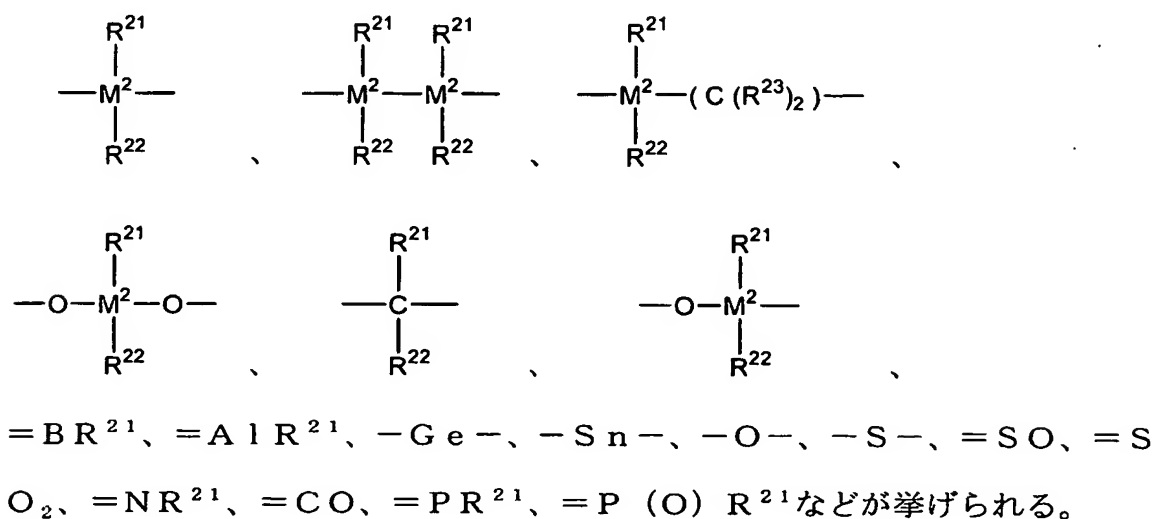
ここで、 $M^1$ は周期表第4族遷移金属であり、具体的にはチタニウム、ジルコニウム、ハフニウムが挙げられる。 $R^{11}$ および $R^{12}$ はそれぞれ独立に、水素原子；炭素原子数1～10のアルキル基；炭素原子数1～10のアルコキシ基；炭素原子数6～10のアリール基；炭素原子数6～10のアリーロキシ基；炭素原子数2～10のアルケニル基；炭素原子数7～40のアリールアルキル基；炭素原子数7～40のアルキルアリール基；炭素原子数8～40のアリールアルケニル基；またはハロゲン原子である。 $R^{11}$ および $R^{12}$ は、塩素原子であることが好ましい。

- 10 上記式(3)中、 $R^{13}$ および $R^{14}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ハロゲン化されていてもよい炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数6～10のアリール基、 $-N(R^{20})_2$ 、 $-SR^{20}$ 、 $-OSi(R^{20})_3$ 、 $-Si(R^{20})_3$ または $-P(R^{20})_2$ である。ここで、 $R^{20}$ はハロゲン原子、好ましくは塩素原子；炭素原子数1～10、好ましくは1～3のアルキル基；
- 15 または炭素原子数6～10、好ましくは6～8のアリール基である。 $R^{13}$ および $R^{14}$ は、特に水素原子であることが好ましい。

上記式(3)中、 $R^{15}$ および $R^{16}$ の具体例は、水素原子を除いて $R^{13}$ および $R^{14}$ と同じもので定義される。 $R^{15}$ および $R^{16}$ は、互いに同じでも異なってい

てもよいが、同じであることが好ましい。R<sup>15</sup>およびR<sup>16</sup>は、好ましくはハロゲン化されていてもよい炭素原子数1～4のアルキル基、具体的にはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、トリフルオロメチル等が挙げられ、特にメチルが好ましい。

5 上記式(3)中、R<sup>17</sup>としては、



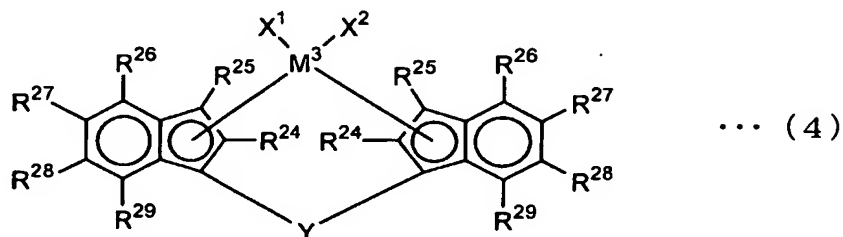
ここで、M<sup>2</sup>はケイ素、ゲルマニウムまたは錫であり、好ましくはケイ素またはゲルマニウムである。R<sup>21</sup>、R<sup>22</sup>およびR<sup>23</sup>はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数1～10のフルオロアルキル基、炭素原子数6～10のアリール基、炭素原子数6～10のフルオロアリール基、炭素原子数1～10のアルコキシ基、炭素原子数2～10のアルケニル基、炭素原子数7～40のアリールアルキル基、炭素原子数8～40のアリールアルケニル基、または炭素原子数7～40のアルキルアリール基である。「R<sup>21</sup>とR<sup>22</sup>と」または「R<sup>21</sup>とR<sup>23</sup>と」は、それぞれ、それらが結合する原子と一緒になって環を形成してもよい。また、R<sup>17</sup>は、=CR<sup>21</sup>R<sup>22</sup>、=SiR<sup>21</sup>R<sup>22</sup>、=GeR<sup>21</sup>R<sup>22</sup>、-O-、-S-、=SO、=PR<sup>21</sup>または=P(O)R<sup>21</sup>であることが好ましい。R<sup>18</sup>およびR<sup>19</sup>はそれぞれ独

立に、 $R^{21}$ と同じものが例示できる。 $m$ および $n$ はそれぞれ独立に、0、1または2、好ましくは0または1であり、 $m+n$ は0、1または2、好ましくは0または1である。

上記式(3)で表されるメタロセン化合物の例としては、たとえば、*rac*-  
5 エチレン(2-メチル-1-インデニル)2-ジルコニウム-ジクロライド、  
*rac*-ジメチルシリレン(2-メチル-1-インデニル)2-ジルコニウム-ジクロライドなどが挙げられる。これらのメタロセン化合物は、たとえば、特開平4-268307号公報に記載の方法で製造することができる。

(メタロセン化合物の例-3)

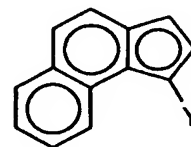
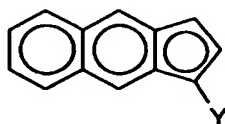
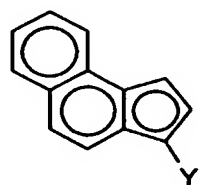
10 メタロセン化合物として、下記式(4)で表されるメタロセン化合物を用いることもできる。



式(4)中、 $M^3$ は、周期表第4族の遷移金属原子を示し、具体的にはチタニウム、ジルコニウム、ハフニウムなどである。 $R^{24}$ および $R^{25}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1~20の炭化水素基、炭素原子  
15 数1~20のハロゲン化炭化水素基、ケイ素含有基、酸素含有基、イオウ含有基、窒素含有基またはリン含有基を示す。 $R^{24}$ は炭化水素基であることが好ましく、特にメチル、エチルまたはプロピルの炭素原子数1~3のアルキル基であることが好ましい。 $R^{25}$ は水素原子または炭化水素基が好ましく、特に水素  
20 原子、またはメチル、エチルもしくはプロピルの炭素原子数1~3のアルキル基であることが好ましい。 $R^{26}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ および $R^{29}$ はそれぞれ独立に、



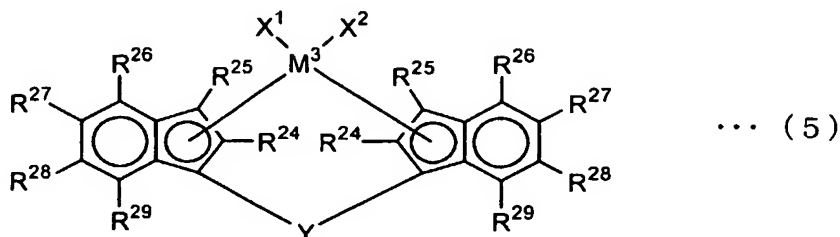
- 水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 20 の炭化水素基、炭素原子数 1 ～ 20 のハロゲン化炭化水素基を示す。これらの中で、水素原子、炭化水素基またはハロゲン化炭化水素基であることが好ましい。 $R^{26}$ と $R^{27}$ 、 $R^{27}$ と $R^{28}$ 、 $R^{28}$ と $R^{29}$ のうち少なくとも 1 組は、それらが結合している炭素原子と一緒に
- 5 なって、単環の芳香族環を形成していてもよい。また芳香族環を形成する基以外に、炭化水素基またはハロゲン化炭化水素基が 2 個以上ある場合には、これらが互いに結合して環状になっていてもよい。なお $R^{29}$ が芳香族基以外の置換基である場合、水素原子であることが好ましい。 $X^1$ および $X^2$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 20 の炭化水素基、炭素原子数
- 10 1 ～ 20 のハロゲン化炭化水素基、酸素原子含有基またはイオウ原子含有基を示す。 $Y$ は、炭素原子数 1 ～ 20 の 2 価の炭化水素基、炭素原子数 1 ～ 20 の 2 価のハロゲン化炭化水素基、2 価のケイ素含有基、2 価のゲルマニウム含有基、2 価のスズ含有基、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-S-$ 、 $-SO-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NR^{30}-$ 、 $-P(R^{30})-$ 、 $-P(O)(R^{30})-$ 、 $-BR^{30}-$ または $-A$
- 15  $1 R^{30}-$ を示す。ここで、 $R^{30}$ は水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 20 の炭化水素基、または炭素原子数 1 ～ 20 のハロゲン化炭化水素基である
- 式(4)において、 $R^{26}$ と $R^{27}$ 、 $R^{27}$ と $R^{28}$ 、 $R^{28}$ と $R^{29}$ のうち少なくとも 1 組が互いに結合して形成する単環の芳香族環を含み、 $M^3$ に配位する配位子としては、たとえば次式で表されるものが挙げられる。



(式中、 $Y$ は上記式(4)中の $Y$ と同じもので定義される。)

(メタロセン化合物の例－４)

メタロセン化合物としては、また下記式（５）で表されるメタロセン化合物を用いることもできる。



- 5 式（５）中、 $M^3$ 、 $R^{24}$ 、 $R^{25}$ 、 $R^{26}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ および $R^{29}$ は、上記（４）と同じもので定義される。 $R^{26}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ および $R^{29}$ のうち、 $R^{26}$ を含む２個の基はアルキル基であることが好ましく、 $R^{26}$ と $R^{28}$ 、または $R^{28}$ と $R^{29}$ がアルキル基であることが好ましい。このアルキル基は、２級または３級アルキル基であることが好ましく、ハロゲン原子、ケイ素含有基で置換されたものでもよい。ハロゲン原子、ケイ素含有基としては、 $R^{24}$ および $R^{25}$ で例示した置換基が挙げられる。 $R^{26}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ および $R^{29}$ のうち、アルキル基以外の基は、水素原子であることが好ましい。また、 $R^{26}$ 、 $R^{27}$ 、 $R^{28}$ および $R^{29}$ は、これらから選ばれる２種の基が互いに結合して芳香族環以外の単環あるいは多環を形成していてもよい。ハロゲン原子としては、上記 $R^{24}$ および $R^{25}$ と同様のものが挙げられる。 $X^1$ 、 $X^2$ および $Y$ は、前述のものと同様のものが挙げられる。

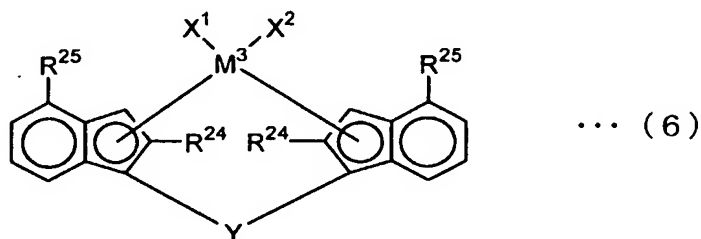
上記式（５）で表されるメタロセン化合物の具体的な例として、*rac*-ジメチルシリレンービス（４，７-ジメチルー１-インデニル）ジルコニウムジクロリド、*rac*-ジメチルシリレンービス（２，４，７-トリメチルー１-インデニル）ジルコニウムジクロリド、*rac*-ジメチルシリレンービス（２，４，６-トリメチルー１-インデニル）ジルコニウムジクロリドなどが挙げら

れる。

これらの化合物において、ジルコニウム金属を、チタニウム金属、ハフニウム金属に置き換えた遷移金属化合物を用いることもできる。遷移金属化合物は、通常ラセミ体として用いられるが、R型またはS型を用いることもできる。

# 5 (メタロセン化合物の例－5)

メタロセン化合物として、下記式(6)で表されるメタロセン化合物を使用することもできる。



- 式(6)中、 $M^3$ 、 $R^{24}$ 、 $X^1$ 、 $X^2$ およびYは、上記式(4)と同じもので定義される。 $R^{24}$ は炭化水素基であることが好ましく、特にメチル、エチル、プロピルまたはブチルの炭素原子数1～4のアルキル基であることが好ましい。 $R^{25}$ は、炭素原子数6～16のアリール基を示す。 $R^{25}$ はフェニル、ナフチルであることが好ましい。アリール基は、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基または炭素原子数1～20のハロゲン化炭化水素基で置換されたものでもよい。 $X^1$ および $X^2$ としては、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基であることが好ましい。

- 上記式(6)で表されるメタロセン化合物の具体的な例として、rac-ジメチルシリレンービス(4-フェニル-1-インデニル)ジルコニウムジクロリド、rac-ジメチルシリレンービス(2-メチル-4-フェニル-1-インデニル)ジルコニウムジクロリド、rac-ジメチルシリレンービス(2-メチル-4-( $\alpha$ -ナフチル)-1-インデニル)ジルコニウムジクロリド、

rac-ジメチルシリレンービス(2-メチル-4-(β-ナフチル)-1-インデニル)ジルコニウムジクロリド、rac-ジメチルシリレンービス(2-メチル-4-(1-アントリル)-1-インデニル)ジルコニウムジクロリドなどが挙げられる。また、これらの化合物において、ジルコニウム金属をチタニウム金属またはハフニウム金属に置き換えた遷移金属化合物を用いることもできる。

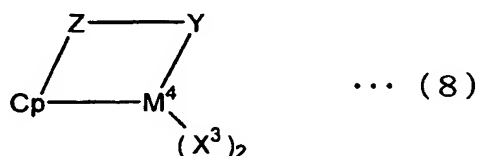
(メタロセン化合物の例-6)

メタロセン化合物として、下記式(7)で表されるメタロセン化合物を用いることもできる。



ここで、 $M^4$ は周期表第4族またはランタニド系列の金属である。 $L a$ は非局在化 $\pi$ 結合基の誘導体であり、金属 $M^4$ 活性サイトに拘束幾何形状を付与している基である。 $X^3$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数20以下の炭化水素基、20以下のケイ素を含有するシリル基または20以下のゲルマニウムを含有するゲルミル基である。

この化合物の中では、次式(8)で示される化合物が好ましい。

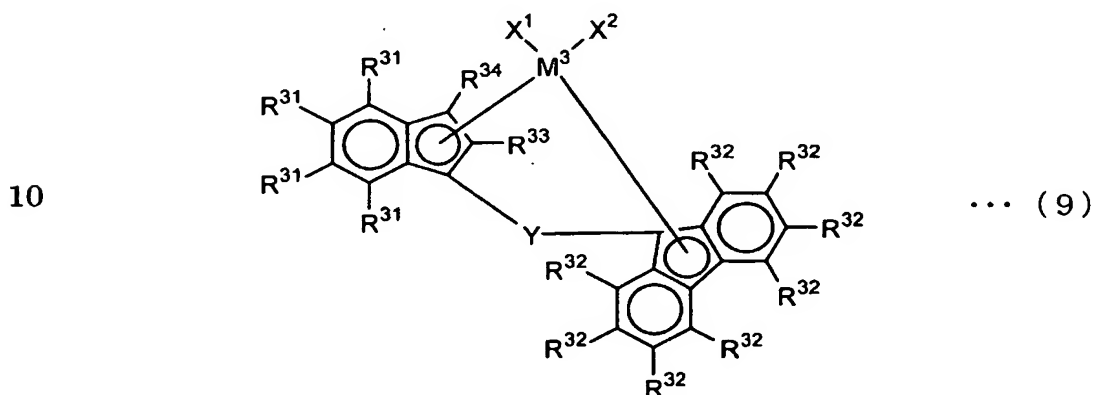


式(8)中、 $M^4$ は、チタン、ジルコニウムまたはハフニウムである。 $X^3$ は上記式(7)と同様のものによって定義される。 $C p$ は $M^4$ に $\pi$ 結合しており、かつ置換基 $Z$ を有する置換シクロペンタジエニル基である。 $Z$ は酸素、イオウ、ホウ素または周期表第4族の元素(たとえばケイ素、ゲルマニウムまたは錫)である。 $Y$ は窒素、リン、酸素またはイオウを含む配位子であり、 $Z$ と $Y$ とで縮

合環を形成していてもよい。このような式（８）で表されるメタロセン化合物の具体的な例として、（ジメチル（*t*-ブチルアミド）（テトラメチルー $\eta$  5-シクロペンタジエニル）シラン）チタンジクロリド、（（*t*-ブチルアミド）（テトラメチルー $\eta$  5-シクロペンタジエニル）-1, 2-エタンジイル）チタンジクロリドなどが挙げられる。また、このメタロセン化合物において、チタンをジルコニウムまたはハフニウムに置き換えた化合物を挙げることもできる。

（メタロセン化合物の例－７）

メタロセン化合物としては、下記式（９）で表されるメタロセン化合物を使用することもできる。

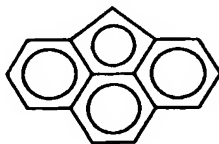


式（９）中、 $M^3$ は周期表第４族の遷移金属原子であり、具体的には、チタニウム、ジルコニウムまたはハフニウムであり、好ましくはジルコニウムである。複数の $R^{31}$ は互いに同一でも異なってもよく、そのうち少なくとも１個が炭素原子数１１～２０のアリール基、炭素原子数１２～４０のアリーラルキル基、炭素原子数１３～４０のアリーラルケニル基、炭素原子数１２～４０のアルキルアリール基またはケイ素含有基であるか、または $R^{31}$ で示される基のうち隣接する少なくとも２個の基が、それらの結合する炭素原子とともに単数または複数の芳香族環または脂肪族環を形成している。この場合、 $R^{31}$ により形成される環は、 $R^{31}$ が結合する炭素原子を含んで全体として炭素原子

15

数が4～20である。複数の $R^{31}$ のうち、アリール基、アリールアルキル基、アリールアルケニル基、アルキルアリール基および芳香族環、脂肪族環を形成している $R^{31}$ 以外の $R^{31}$ は、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～10のアルキル基またはケイ素含有基である。

- 5  $R^{32}$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～10のアルキル基、炭素原子数6～20のアリール基、炭素原子数2～10のアルケニル基、炭素原子数7～40のアリールアルキル基、炭素原子数8～40のアリールアルケニル基、炭素原子数7～40のアルキルアリール基、ケイ素含有基、酸素含有基、イオウ含有基、窒素含有基またはリン含有基である。
- 10 また、 $R^{32}$ で示される基のうち隣接する少なくとも2個の基が、それらの結合する炭素原子とともに単数または複数の芳香族環または脂肪族環を形成していてもよい。この場合、 $R^{32}$ により形成される環は、 $R^{32}$ が結合する炭素原子を含んで全体として炭素原子数が4～20である。複数の $R^{32}$ のうち、芳香族環、脂肪族環を形成している $R^{32}$ 以外の $R^{32}$ は、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～10のアルキル基またはケイ素含有基である。なお、 $R^{32}$ で示される2個の基が単数または複数の芳香族環または脂肪族環を形成して構成される基にはフルオレニル基が次式のような構造を形成する基も含まれる。
- 15



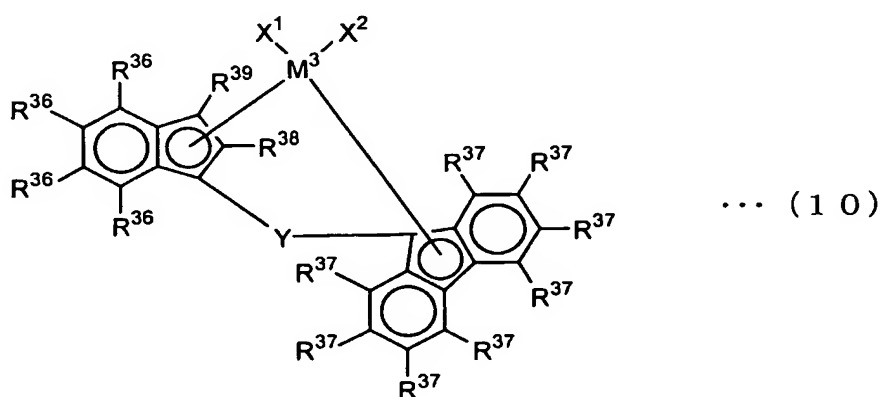
- $R^{32}$ は、水素原子またはアルキル基であることが好ましく、特に水素原子またはメチル、エチル、プロピルの炭素原子数1～3の炭化水素基であることが好ましい。 $R^{32}$ を有するフルオレニル基としては、2,7-ジアルキルフルオレニル基が好適な例として挙げられ、この場合のアルキル基としては、炭素
- 20

原子数 1 ～ 5 のアルキル基が挙げられる。また、 $R^{31}$  と  $R^{32}$  は互いに同一でも異なってもよい。 $R^{33}$  および  $R^{34}$  はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基、炭素原子数 6 ～ 20 のアリール基、炭素原子数 2 ～ 10 のアルケニル基、炭素原子数 7 ～ 40 のアリールアルキル基、炭素原子数 8 ～ 40 のアリールアルケニル基、炭素原子数 7 ～ 40 のアルキルアリール基、ケイ素含有基、酸素含有基、イオウ含有基、窒素含有基またはリン含有基である。これらのうち、 $R^{33}$  および  $R^{34}$  は、少なくとも一方が炭素原子数 1 ～ 3 のアルキル基であることが好ましい。 $X^1$  および  $X^2$  はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 20 の炭化水素基、炭素原子数 1 ～ 20 のハロゲン化炭化水素基、酸素含有基、イオウ含有基もしくは窒素含有基、または  $X^1$  と  $X^2$  とから形成された共役ジエン残基である。 $X^1$  と  $X^2$  とから形成された共役ジエン残基としては、1, 3-ブタジエン、2, 4-ヘキサジエン、1-フェニル-1, 3-ペンタジエン、1, 4-ジフェニルブタジエンの残基が好ましく、これらの残基はさらに炭素原子数 1 ～ 10 の炭化水素基で置換されたものでもよい。 $X^1$  および  $X^2$  としては、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 20 の炭化水素基またはイオウ含有基であることが好ましい。 $Y$  は、炭素原子数 1 ～ 20 の 2 価の炭化水素基、炭素原子数 1 ～ 20 の 2 価のハロゲン化炭化水素基、2 価のケイ素含有基、2 価のゲルマニウム含有基、2 価のスズ含有基、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-S-$ 、 $-SO-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NR^{35}-$ 、 $-P(R^{35})-$ 、 $-P(O)(R^{35})-$ 、 $-BR^{35}-$  または  $-AlR^{35}-$  を示す。ここで、 $R^{35}$  は水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 20 の炭化水素基または炭素原子数 1 ～ 20 のハロゲン化炭化水素基である。これらの 2 価の基のうち、 $-Y-$  の最短連結部が 1 個または 2 個の原子で構成されているものが好ましい。また、 $R^{35}$  は、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 20 の炭化水素基、

- 炭素原子数 1 ～ 20 のハロゲン化炭化水素基が好ましい。Y は、炭素原子数 1 ～ 5 の 2 価の炭化水素基、2 価のケイ素含有基または 2 価のゲルマニウム含有基であることが好ましく、2 価のケイ素含有基であることがより好ましく、アルキルシリレン、アルキルアリールシリレンまたはアリールシリレンであることが特に好ましい。

(メタロセン化合物の例－ 8)

メタロセン化合物としては、下記式 (10) で表されるメタロセン化合物を用いることもできる。



- 式 (10) 中、 $M^3$  は周期表第 4 族の遷移金属原子であり、具体的にはチタニウム、ジルコニウムまたはハフニウムであり、好ましくはジルコニウムである。 $R^{36}$  はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基、炭素原子数 6 ～ 10 のアリール基、炭素原子数 2 ～ 10 のアルケニル基、ケイ素含有基、酸素含有基、イオウ含有基、窒素含有基またはリン含有基である。なお、上記アルキル基およびアルケニル基は、ハロゲン原子で置換されたものでもよい。 $R^{36}$  は、これらのうち、アルキル基、アリール基または水素原子であることが好ましく、特にメチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピルの炭素原子数 1 ～ 3 の炭化水素基、フェニル、 $\alpha$ -ナフチル、 $\beta$ -ナフチルなどのアリール基または水素原子であることが好ましい。 $R^{37}$  はそれぞれ



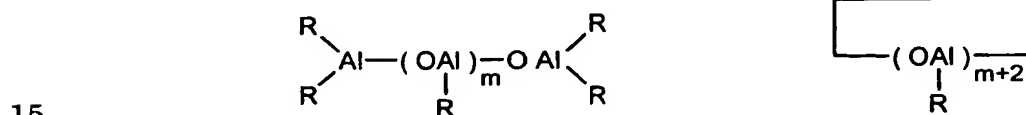
- れ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 6～20 のアリール基、炭素原子数 2～10 のアルケニル基、炭素原子数 7～40 のアリールアルキル基、炭素原子数 8～40 のアリールアルケニル基、炭素原子数 7～40 のアルキルアリール基、ケイ素含有基、酸素含有基、
- 5 イオウ含有基、窒素含有基またはリン含有基である。なお、上記アルキル基、アリール基、アルケニル基、アリールアルキル基、アリールアルケニル基およびアルキルアリール基は、ハロゲンで置換されたものでもよい。 $R^{37}$ はこれらのうち、水素原子またはアルキル基であることが好ましく、特に水素原子またはメチル、エチル、*n*-プロピル、*i*-プロピル、*n*-ブチル、*tert*-ブチルの炭素原子数 1～4 の炭化水素基であることが好ましい。また、上記  $R^{36}$
- 10 と  $R^{37}$  は互いに同一でも異なってもよい。 $R^{38}$  および  $R^{39}$  は、いずれか一方が炭素原子数 1～5 のアルキル基であり、他方は水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1～10 のアルキル基、炭素原子数 2～10 のアルケニル基、ケイ素含有基、酸素含有基、イオウ含有基、窒素含有基またはリン含有基である。
- 15 これらのうち、 $R^{38}$  および  $R^{39}$  は、いずれか一方がメチル、エチル、プロピルなどの炭素原子数 1～3 のアルキル基であり、他方は水素原子であることが好ましい。 $X^1$  および  $X^2$  はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1～20 の炭化水素基、炭素原子数 1～20 のハロゲン化炭化水素基、酸素含有基、イオウ含有基もしくは窒素含有基、または  $X^1$  と  $X^2$  とから形成された
- 20 共役ジエン残基である。これらのうち、ハロゲン原子または炭素原子数 1～20 の炭化水素基であることが好ましい。 $Y$  は、炭素原子数 1～20 の 2 価の炭化水素基、炭素原子数 1～20 の 2 価のハロゲン化炭化水素基、2 価のケイ素含有基、2 価のゲルマニウム含有基、2 価のスズ含有基、 $-O-$ 、 $-CO-$ 、 $-S-$ 、 $-SO-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NR^{40}-$ 、 $-P(R^{40})-$ 、 $-P(O)(R$

<sup>40</sup>)  $-$ 、 $-BR^{40}-$ または $-AlR^{40}-$ を示す。ここで、 $R^{40}$ は水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数1～20の炭化水素基または炭素原子数1～20のハロゲン化炭化水素基である。これらのうち、Yは、炭素原子数1～5の2価の炭化水素基、2価のケイ素含有基または2価のゲルマニウム含有基であることが好ましく、2価のケイ素含有基であることがより好ましく、アルキルシリレン、アルキルアリールシリレンまたはアリールシリレンであることが特に好ましい。

上述したメタロセン化合物は、単独であるいは2種以上を組み合わせて用いられる。またメタロセン化合物は、炭化水素またはハロゲン化炭化水素などに希釈して用いてもよい。

(有機アルミニウムオキシ化合物)

有機アルミニウムオキシ化合物は、公知のアルミノオキサンであってもよく、またベンゼン不溶性の有機アルミニウムオキシ化合物であってもよい。このような公知のアルミノオキサンは、具体的には次式で表される。



ここで、Rはメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基などの炭化水素基であり、好ましくはメチル基、エチル基、特に好ましくはメチル基であり、mは2以上、好ましくは5～40の整数である。

アルミノオキサンは式 $-(OAl(R'))-$ で表されるアルキルオキシアルミニウム単位および式 $-(OAl(R''))-$ で表されるアルキルオキシアルミニウム単位からなる混合アルキルオキシアルミニウム単位により形成されていてもよい。ここで、R'およびR''は上記Rと同様の炭化水素基を例示することができ、R'およびR''は相異なる基を表す。なお、有機アルミニウムオキ

シ化合物は、少量のアルミニウム以外の金属の有機化合物成分を含有していてもよい。

(イオン化イオン性化合物)

イオン化イオン性化合物（イオン性イオン化化合物、イオン性化合物と称される場合もある）としては、ルイス酸、イオン性化合物、ボラン化合物およびカルボラン化合物を例示することができる。ルイス酸としては、 $BR_3$ （Rは、フッ素、メチル基、トリフルオロメチル基などの置換基を有していてもよいフェニル基またはフッ素である。）で表される化合物が挙げられる。ルイス酸の具体的なものとしては、トリフルオロボロン、トリフェニルボロン、トリス（4-フルオロフェニル）ボロン、トリス（3, 5-ジフルオロフェニル）ボロン、トリス（4-フルオロメチルフェニル）ボロン、トリス（ペンタフルオロフェニル）ボロン、トリス（p-トリル）ボロン、トリス（o-トリル）ボロン、トリス（3, 5-ジメチルフェニル）ボロンなどが挙げられる。

上記イオン性化合物としては、トリアルキル置換アンモニウム塩、N, N-ジアルキルアニリニウム塩、ジアルキルアンモニウム塩、トリアリールホスフォニウム塩などが挙げられる。イオン性化合物としてのトリアルキル置換アンモニウム塩としては、トリエチルアンモニウムテトラ（フェニル）ホウ素、トリプロピルアンモニウムテトラ（フェニル）ホウ素、トリ（n-ブチル）アンモニウムテトラ（フェニル）ホウ素などが挙げられる。イオン性化合物としてのジアルキルアンモニウム塩としては、ジ（1-プロピル）アンモニウムテトラ（ペンタフルオロフェニル）ホウ素、ジシクロヘキシルアンモニウムテトラ（フェニル）ホウ素などが挙げられる。

上記イオン性化合物としては、トリフェニルカルベニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、N, N-ジメチルアニリニウムテトラキス（ペ

ンタフルオロフェニル) ボレート、フェロセニウムテトラ (ペンタフルオロフェニル) ボレートなどを挙げることできる。

上記ボラン化合物としては、デカボラン (9)、ビス [トリ (n-ブチル) アンモニウム] ノナボレート、ビス [トリ (n-ブチル) アンモニウム] デカボレート、ビス [トリ (n-ブチル) アンモニウム] ビス (ドデカハイドライドドデカボレート) ニッケル酸塩 (I I I) などの金属ボランアニオンの塩などが挙げられる。

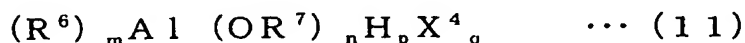
上記カルボラン化合物としては、4-カルバノナボラン (9)、1, 3-ジカルバノナボラン (8)、ビス [トリ (n-ブチル) アンモニウム] ビス (ウンデカハイドライド-7-カルバウンデカボレート) ニッケル酸塩 (I V) などの金属カルボランアニオンの塩などが挙げられる。

このようなイオン化イオン性化合物は、単独であるいは2種以上組み合わせて用いられる。

また、メタロセン系触媒を形成する際に、有機アルミニウムオキシ化合物および/またはイオン化イオン性化合物とともに、以下のような有機アルミニウム化合物を用いてもよい。

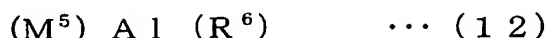
(有機アルミニウム化合物)

必要に応じて用いられる有機アルミニウム化合物としては、分子内に少なくとも1個のAl-炭素結合を有する化合物が使用できる。このような化合物としては、たとえば下記式 (11) で表される有機アルミニウム化合物および下記式 (12) で表される第1属金属とアルミニウムとの錯アルキル化物などが挙げられる。



(式中、 $R^6$ および $R^7$ はそれぞれ独立に、炭素原子を通常1~15個、好まし

くは1～4個含む炭化水素基である。 $X^4$ はハロゲン原子である。 $m$ は $0 < m \leq 3$ 、 $n$ は $0 \leq n < 3$ 、 $p$ は $0 \leq p < 3$ 、 $q$ は $0 \leq q < 3$ を満たす数であって、かつ $m + n + p + q = 3$ である。）



- 5 (式中、 $M^5$ はLi、NaまたはKであり、 $R^6$ は上記一般式(11)の $R^6$ と同じもので定義される。)

(重合)

- 本発明に係るオレフィン系ワックス(A)は、上記メタロセン系触媒の存在下に、エチレンとジエンとを通常液相で単独重合させるか、またはエチレンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンから選択される少なくとも1種の $\alpha$ -オレフィンと少なくとも1種のジエンとを共重合させることにより得られる。この際、一般に炭化水素溶媒が用いられるが、 $\alpha$ -オレフィンを溶媒として用いてもよい。なお、ここで用いる各モノマーは、前述した通りである。

- 10 重合方法は、オレフィン系ワックス(A)がヘキサンなどの溶媒中に粒子として存在する状態で重合する懸濁重合、溶媒を用いないで重合する気相重合、そして140℃以上の重合温度で、オレフィン系ワックス(A)が溶剤と共存または単独で溶解した状態で重合する溶液重合が可能であり、その中でも溶液重合が経済性と品質の両面で好ましい。

- 20 重合反応は、バッチ法あるいは連続法いずれの方法で行ってもよい。重合をバッチ法で実施するに際しては、前記の触媒成分は以下の濃度条件下で用いられる。

重合系内のメタロセン化合物の濃度は、通常0.00005～0.1ミリモル／リットル(重合容積)、好ましくは0.0001～0.05ミリモル／リットルである。

有機アルミニウムオキシ化合物は、重合系内のメタロセン化合物中の遷移金属に対するアルミニウム原子のモル比（A 1 / 遷移金属）で、1 ~ 10000、好ましくは10 ~ 5000の量で供給される。

イオン化イオン性化合物は、重合系内のメタロセン化合物に対するイオン化  
5 イオン性化合物のモル比（イオン化イオン性化合物 / メタロセン化合物）で表して、0.5 ~ 20、好ましくは1 ~ 10の量で供給される。

また有機アルミニウム化合物が用いられる場合には、有機アルミニウム化合物は、通常約0 ~ 5 ミリモル / リットル（重合容積）、好ましくは約0 ~ 2 ミリモル / リットルとなるような量で用いられる。

10 重合反応は、通常温度が-20 ~ +200℃、好ましくは50 ~ 180℃、さらに好ましくは70 ~ 180℃で、圧力が0を超えて7.8 MPa（80 kg f / cm<sup>2</sup>、ゲージ圧）以下、好ましくは0を超えて4.9 MPa（50 kg f / cm<sup>2</sup>、ゲージ圧）以下の条件下に行われる。

重合に際して、エチレンと少なくとも1種のジエンと、必要に応じて用いら  
15 れる炭素数3 ~ 20の $\alpha$ -オレフィンから選択される少なくとも1種の $\alpha$ -オレフィンとは、前記した特定の組成のオレフィン系ワックス（A）が得られるような割合の量で重合系に供給される。また重合に際しては、水素などの分子量調節剤を添加することもできる。

このようにして重合させると、生成した重合体は通常これを含む重合液とし  
20 て得られるので、常法により処理するとオレフィン系ワックス（A）が得られる。

重合反応において、特に（メタロセン化合物の例-6）で示したメタロセン化合物を含む触媒を使用することが好ましい。

### ＜シリコーン変性オレフィン系ワックス＞

本発明に係るシリコーン変性オレフィン系ワックス（B）は、上記のようなオレフィン系ワックス（A）をハイドロジェンシリコーンでヒドロシリル化したものである。

- 5      反応させるシリコーンとしては、従来技術で公知のいかなるハイドロジェンシリコーンを用いてもよいが、1分子に1個以上のヒドロシリル基（Si-H結合）を有するハイドロジェンシリコーンが好ましい。また、シリコーンの側鎖にヒドロシリル基を有するものが好適であるが、両末端または片末端にヒドロシリル基を有するものも使用することが可能である。コスト面から、シリコーンの側鎖のみにヒドロシリル基を有するものが最も有利である。ハイドロジェンシリコーンとオレフィン系ワックス（A）との反応は、公知の如く、無溶剤あるいは溶剤中で、白金系触媒を使用して実施される。反応温度は30℃～200℃であり、特に120℃～150℃であることが好ましい。オレフィン系ワックス（A）の融点は120℃程度なので、反応温度を120℃以上とすることが、反応系を均一にする点で好ましい。ハイドロジェンシリコーンとオレフィン系ワックス（A）との反応モル比は、通常は、ハイドロジェンシリコーンに対してオレフィン系ワックス（A）が1.05～1.2倍モル程度の小過剰となるような条件で実施されるが、これに限定されるものではない。具体的には、キシレンなどの高沸点溶剤下で反応を行い、溶剤を減圧溜去してシリコーン変性オレフィン系ワックス（B）を得ることができる。
- 10
- 15
- 20

また、ハイドロジェンシリコーンとして、加水分解性の基を1分子中に2個以上有するシランあるいはシロキサン化合物を使用してもよい。この場合、その加水分解性の基としては、メトキシ基、エトキシ基、ブトキシ基などのアルコキシ基、ジメチルケトオキシム基、メチルエチルケトオキシム基などのケト

オキシム基；アセトキシ基などのアシルオキシ基；イソプロペニルオキシ基、イソブテニルオキシ基などのアルケニルオキシ基；N-ブチルアミノ基、N,N-ジエチルアミノ基などのアミノ基；N-メチルアセトアミド基などのアミド基などが挙げられる。これらのうち、アルコキシ基、ケトオキシム基、アルケニルオキシ基、アシルオキシ基が好ましい。

オレフィン系ワックス(A)およびシリコーン変性オレフィン系ワックス(B)は、シランカップリング剤と併用することができる。このようなシランカップリング剤としては、従来技術で公知のいかなるシランカップリング剤を用いてもよい。代表的なシランカップリング剤としては、アクリル（メタクリル）官能性シランカップリング剤、エポキシ官能性シランカップリング剤、アミノ（イミノ）官能性シランカップリング剤などが挙げられる。

アクリル（メタクリル）官能性シランカップリング剤の具体例としては、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、メタクリロキシメチルトリメトキシシラン、メタクリロキシメチルトリエトキシシラン、アクリロキシメチルトリメトキシシラン、アクリロキシメチルトリエトキシシランなどが挙げられる。

エポキシ官能性シランカップリング剤の具体例としては、3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、3-グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、2-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシランなどが挙げられる。

アミノ（イミノ）官能性シランカップリング剤の具体例としては、 $\text{H}_2\text{NC}(\text{H}_2\text{CH}_2\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$ 、 $\text{H}_2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$ 、 $\text{H}_2\text{NCH}_2\text{CH}_2\text{NHCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{OCH}_3)_2$



2、 $(C_2H_5O)_3Si(CH_2)_3NH(CH_2)_2NH(CH_2)_3Si(OC_2H_5)_3$ 等のアミノ基および／またはイミノ基含有アルコキシシラン；アミノ基および／またはイミノ基含有アルコキシシランとエポキシシラン化合物との反応生成物；アミノ基および／またはイミノ基含有アルコキシシランと、 $CH_2=C(CH_3)COOCH_2CH_2CH_2Si(OCH_3)_3$ 、 $CH_2=C(CH_3)COOCH_2CH_2CH_2Si(OCH_2CH_2OCH_3)_3$ などのメタクリルオキシシラン化合物との反応生成物などが挙げられる。

#### <シリコーン系室温固化組成物>

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）は、上記シリコーン変性オレフィン系ワックス（B）を含有し、たとえばシリコーン変性オレフィン系ワックス（B）と後述する油剤（C）とからなる。

本発明のシリコーン系室温固化組成物（D）は、上記シリコーン変性オレフィン系ワックス（B）を5～95質量%の範囲で含有することが好ましい。シリコーン系室温固化組成物（D）が、シリコーン変性オレフィン系ワックス（B）と油剤（C）とからなる場合は、シリコーン変性オレフィン系ワックス（B）を5～95質量%、好ましくは20～80質量%、より好ましくは30～70質量%の割合で含有し、油剤（C）を95～5質量%、好ましくは80～20質量%、より好ましくは70～30質量%の割合で含有することが好ましい。

各成分の含有率が上記の範囲内にあると、シリコーン系室温固化組成物（D）は、適度な固さのものを得ることができる。

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物は、後述する化粧料の他、トナー内添剤、カーワックス、各種離型剤等として使用することができる。

#### <化粧料>

本発明に係る化粧料は、上記シリコーン変性オレフィン系ワックス（B）お

よび／またはシリコーン系室温固化組成物（D）を含有する。より詳しくは、シリコーン変性オレフィン系ワックス（B）と、必要に応じて油剤（C）とを含有する。

本発明に係る化粧料は、化粧水、乳液、クリーム、クレンジング、パック、  
5 オイルリキッド、マッサージ料、洗浄剤、脱臭剤、ハンドクリーム、リップクリーム等のスキンケア化粧料；メイクアップ下地、白粉、リキッドファンデーション、油性ファンデーション、頬紅、アイシャドウ、マスカラ、アイライナー、アイブロウ、口紅等のメイクアップ化粧料；シャンプー、リンス、トリートメント、セット剤等の頭髮（毛髪）化粧料；制汗剤化粧料；日焼け止め乳液  
10 や日焼け止めクリームなどの紫外線防御化粧料などが挙げられる。

また、本発明に係る化粧料は、液状、乳液状、クリーム状、固形状、ペースト状、ゲル状、粉末状、プレス状、多層状、ムース状、スプレー状、スティック状、ペンシル状等の種々の形状をとることができ、特に、固形状またはスティック状が好ましい。

15

（C）油剤：

本発明のシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧料は、その目的に応じて1種または2種以上の油剤（C）を含有することができる。このような油剤（C）としては、通常の化粧料に使用されるものであれば、常温で固体、半  
20 固体、液状の油剤のいずれも使用することができる。

たとえば、天然動植物油脂類および半合成油脂としては、アボガド油、アマニ油、アーモンド油、イボタロウ、エノ油、オリーブ油、カカオ脂、カポックロウ、カヤ油、カルナウバロウ、肝油、キャンデリラロウ、牛脂、牛脚脂、牛骨脂、硬化牛脂、キョウニン油、鯨ロウ、硬化油、小麦胚芽油、ゴマ油、コメ

胚芽油、コメヌカ油、サトウキビロウ、サザンカ油、サフラワー油、シアバター、シナギリ油、シナモン油、ジョジョバロウ、セラックロウ、タートル油、大豆油、茶実油、ツバキ油、月見草油、トウモロコシ油、豚脂、ナタネ油、日本キリ油、ヌカロウ、胚芽油、馬脂、パーシック油、パーム油、パーム核油、

5 ヒマシ油、硬化ヒマシ油、ヒマシ油脂肪酸メチルエステル、ヒマワリ油、ブドウ油、ベイベリーロウ、ホホバ油、マカデミアナッツ油、ミツロウ、ミンク油、綿実油、綿ロウ、モクロウ、モクロウ核油、モンタンロウ、ヤシ油、硬化ヤシ油、トリヤシ油、脂肪酸グリセライド、羊脂、落花生油、ラノリン、液状ラノリン、還元ラノリン、ラノリンアルコール、硬質ラノリン、酢酸ラノリン、ラ

10 ノリン脂肪酸イソプロピル、ラウリン酸ヘキシル、POEラノリンアルコールエーテル、POEラノリンアルコールアセテート、ラノリン脂肪酸ポリエチレングリコール、POE水素添加ラノリンアルコールエーテル、卵黄油などが挙げられる。ここで、POEはポリオキシエチレンを意味する。

炭化水素油としては、オゾケライト、スクワラン、スクワレン、セレシン、

15 パラフィン、パラフィンワックス、流動パラフィン、プリスタン、ポリイソブチレン、マイクロクリスタリンワックス、ワセリンなどが挙げられる。

高級脂肪酸としては、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘン酸、ウンデシレン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸、アラキドン酸、エイコサペンタエン酸(EPA)、ドコサヘキサエン酸(DHA)、

20 イソステアリン酸、12-ヒドロキシステアリン酸などが挙げられる。

高級アルコールとしては、ラウリルアルコール、ミリスチルアルコール、パルミチルアルコール、ステアリルアルコール、ベヘニルアルコール、ヘキサデシルアルコール、オレイルアルコール、イソステアリルアルコール、ヘキシルドデカノール、オクチルドデカノール、セトステアリルアルコール、2-デシ

ルテトラデシノール、コレステロール、フィトステロール、POEコレステロールエーテル、モノステアリルグリセリンエーテル（バチルアルコール）、モノオレイルグリセリルエーテル（セラキルアルコール）などが挙げられる。

- エステル油としては、アジピン酸ジイソブチル、アジピン酸2-ヘキシルデ
- 5 シル、アジピン酸ジ-2-ヘプチルウンデシル、モノイソステアリン酸N-アルキルグリコール、イソステアリン酸イソセチル、トリイソステアリン酸トリメチロールプロパン、ジ-2-エチルヘキサン酸エチレングリコール、2-エチルヘキサン酸セチル、トリ-2-エチルヘキサン酸トリメチロールプロパン、テトラ-2-エチルヘキサン酸ペンタエリスリトール、オクタン酸セチル、オ
- 10 クチルドデシルガムエステル、オレイン酸オレイル、オレイン酸オクチルドデシル、オレイン酸デシル、ジオクタン酸ネオペンチルグリコール、ジカプリン酸ネオペンチルグリコール、クエン酸トリエチル、コハク酸2-エチルヘキシル、酢酸アミル、酢酸エチル、酢酸ブチル、ステアリン酸イソセチル、ステアリン酸ブチル、セバシン酸ジイソプロピル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシ
- 15 ル、乳酸セチル、乳酸ミリスチル、イソノナン酸イソノニル、イソノナン酸イソトリデシル、パルミチン酸イソプロピル、パルミチン酸2-エチルヘキシル、パルミチン酸2-ヘキシルデシル、パルミチン酸2-ヘプチルウンデシル、1
- 20 2-ヒドロキシステアリル酸コレステリル、ジペンタエリスリトール脂肪酸エステル、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸オクチルドデシル、ミリスチン酸2-ヘキシルデシル、ミリスチン酸ミリスチル、ジメチルオクタン酸ヘキシルデシル、ラウリン酸エチル、ラウリン酸ヘキシル、N-ラウロイル-L-グルタミン酸-2-オクチルドデシルエステル、リンゴ酸ジイソステアリル
- など；グリセライド油としては、アセトグリセリル、トリイソオクタン酸グリセリル、トリイソステアリン酸グリセリル、トリイソパルミチン酸グリセリル、

モノステアリン酸グリセリル、ジ-2-ヘプチルウンデカン酸グリセリル、トリミリスチン酸グリセリル、ミリスチン酸イソステアリン酸ジグリセリルなどが挙げられる。

- シリコーン油としては、ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、メチルハイドロジェンポリシロキサン、ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体などの低粘度から高粘度のオルガノポリシロキサン；オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、テトラメチルテトラヒドロジェンシクロテトラシロキサン、テトラメチルテトラフェニルシクロテトラシロキサンなどの環状シロキサン；高重合度のガム状ジメチルポリシロキサン、ガム状のジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサン共重合体などのシリコーンゴムおよびシリコーンゴムの環状シロキサン溶液；トリメチルシロキシケイ酸、トリメチルシロキシケイ酸の環状シロキサン溶液；ステアロキシシリコーンなどの高級アルコキシ変性シリコーン；高級脂肪酸変性シリコーン；アルキル変性シリコーン；アミノ変性シリコーン；フッ素変性シリコーン；およびシリコーンレジン
- 10 5 10 15 20
- の溶解物などが挙げられる。

これらのシリコーン油の構造は特に限定されず、直鎖状、分枝状、環状のいずれでもよいが、特に、大部分が $-\text{Si}-\text{O}-$ 骨格からなるものが好ましい。このようなシリコーン油は、分子内の一部に $-\text{Si}-(\text{CH}_2\text{CH}_2)$

20

$-\text{Si}-$ 結合を有してもよい。

また、前記シリコーン油は、下記式



(式中、 $\text{R}^1$ は、水素原子、炭素数1～30のアルキル基もしくはフッ素置換アルキル基、炭素数6～30のアリール基、または炭素数7～30のアラルキル

基を表し、 $a$  は  $0 \leq a \leq 2.5$  である。）

で示される直鎖状、分岐状または環状のシリコーン油であってもよい。本発明に用いられる油剤（C）は、その少なくとも一部が上記式で表されるシリコーン油であることが好ましい。

- 5      また、本発明に用いられる油剤（C）の少なくとも一部は、フッ素原子またはアミノ基を有していてもよい。フッ素系油剤としては、パーフルオロポリエーテル、パーフルオロデカリン、パーフルオロオクタンなどが挙げられる。

本発明に用いられる油剤（C）の少なくとも1部は、常温で液体であることが好ましく、また、融点が50℃以上の固形油剤であることも好ましい。

- 10      これらの油剤（C）を化粧品に配合する場合、その配合量は、化粧品全体の1～98質量%の範囲が好ましい。特に、化粧品の形状が固形状またはスティック状である場合は、化粧品全体の5～95質量%の配合が好ましい。

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、その目的に応じて、シリコーン変性オレフィン系ワックス（B）および油剤（C）に

- 15      加えて、以下のような成分を配合されていてもよい。

（E）水：

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、その目的に応じて水（E）を配合することもできる。水（E）の配合量は、化粧品全体の1～95質量%の範囲が好ましい。

- 20      （F）分子構造中にアルコール性水酸基を有する化合物：

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、その目的に応じて、分子構造中にアルコール性水酸基を有する化合物（F）を1種単独でまたは2種以上を組み合わせ用いることもできる。

アルコール性水酸基を有する化合物（F）としては、エタノール、イソプロ

パノール等の低級アルコール；ソルビトール、マルトース等の糖アルコール；コレステロール、シトステロール、フィトステロール、ラノステロール等のステロール；ブチレングリコール、プロピレングリコール、ジブチレングリコール等の多価アルコール等が挙げられる。アルコール性水酸基を有する化合物

- 5 (F) 配合量は、化粧品全体の0.1～98質量%の範囲が好ましい。

(G) 水溶性または水膨潤性高分子：

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、その目的に応じて、水溶性または水膨潤性高分子（G）を1種単独でまたは2種以上を組み合わせて用いることもできる。

- 10 水溶性または水膨潤性高分子（G）としては、たとえば、アラビアゴム、トラガカント、ガラクトン、キャロブガム、グアーガム、カラヤガム、カラギーナン、ペクチン、寒天、クインスード（マルメロ）、デンプン（コメ、トウモロコシ、バレイショ、コムギ）、アルゲコロイド、トラントガム、ローカストビーンガムなどの植物系高分子；キサンタンガム、デキストラン、サクシノグルカン、プルランなどの微生物系高分子；コラーゲン、カゼイン、アルブミン、ゼラチンなどの動物系高分子；カルボキシメチルデンプン、メチルヒドロキシプロピルデンプンなどのデンプン系高分子；メチルセルロース、エチルセルロース、メチルヒドロキシプロピルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ニトロセルロース、セルロース硫酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、結晶セルロース、セルロース末などのセルロース系高分子；アルギン酸ナトリウム、アルギン酸プロピレングリコールエステルなどのアルギン酸系高分子；ポリビニルメチルエーテル、カルボキシビニルポリマーなどのビニル系高分子；ポリオキシエチレン系高分子；ポリオキシエチレンポリオキシプロピレン
- 15
- 20

共重合体系高分子；ポリアクリル酸ナトリウム、ポリエチルアクリレート、ポリアクリルアミドなどのアクリル系高分子；ポリエチレンイミン、カチオンポリマーなど他の合成水溶性高分子；ベントナイト、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、モンモリロナイト、バイデライト、ノントロナイト、サポナイト、ヘクトライト、無水ケイ酸などの無機系水溶性高分子などが挙げられる。また、これらの水溶性高分子には、ポリビニルアルコールやポリビニルピロリドンなどの皮膜形成剤も含まれる。

水溶性または水膨潤性高分子（G）の配合量は、化粧品全体の0.1～25質量%の範囲が好ましい。

10 (H) 粉体および／または着色剤：

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、その目的に応じて、粉体（H1）および／または着色剤（H2）を1種単独でまたは2種以上を組み合わせて用いることもできる。

このような粉体（H1）や着色剤（H2）は、通常の化粧品に使用されるものであれば、その形状（球状、針状、板状など）や粒子径（煙霧状、微粒子、顔料級など）、粒子構造（多孔質、無孔質など）を問わず、いずれのものも使用することができる。たとえば、無機粉体、有機粉体、界面活性剤金属塩粉体、有色顔料、パール顔料、金属粉末顔料、天然色素などが挙げられる。

無機粉体の具体例としては、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛、酸化セリウム、酸化マグネシウム、硫酸バリウム、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、タルク、マイカ、カオリン、セリサイト、白雲母、合成雲母、金雲母、紅雲母、黒雲母、リチア雲母、ケイ酸、無水ケイ酸、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸アルミニウムマグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸バリウム、ケイ酸ストロンチウム、



タングステン酸金属塩、ヒドロキシアパタイト、バーミキュライト、ハイジライト、ベントナイト、モンモリロナイト、ヘクトライト、ゼオライト、セラミックスパウダー、第二リン酸カルシウム、アルミナ、水酸化アルミニウム、窒化ホウ素、窒化ボロン、シリカなどが挙げられる。

- 5 有機粉体の具体例としては、ポリアミドパウダー、ポリエステルパウダー、ポリエチレンパウダー、ポリプロピレンパウダー、ポリスチレンパウダー、ポリウレタン、ベンゾグアナミンパウダー、ポリメチルベンゾグアナミンパウダー、テトラフルオロエチレンパウダー、ポリメチルメタクリレートパウダー、セルロース、シルクパウダー、ナイロンパウダー、12ナイロン、6ナイロン、
- 10 ジメチルシリコーンを架橋した構造を持つ架橋型シリコーン微粉末、ポリメチルシルセスキオキサンの微粉末、スチレン・アクリル酸共重合体、ジビニルベンゼン・スチレン共重合体、ビニル樹脂、尿素樹脂、フェノール樹脂、フッ素樹脂、ケイ素樹脂、アクリル樹脂、メラミン樹脂、エポキシ樹脂、ポリカーボネート樹脂、微結晶繊維粉体、デンプン粉末、ラウロイルリジンなどが挙げられる。さらに、大部分が $-\text{Si}-\text{O}-$ 骨格からなる有機粉末も用いることができる。この場合、分子内の一部に $-\text{Si}(\text{CH}_2\text{CH}_2)_m-\text{Si}-$ 結合を有してもよい。
- 15

- 界面活性剤金属塩粉体（金属石鹸）の具体例としては、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸アルミニウム、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム、ミリスチン酸亜鉛、ミリスチン酸マグネシウム、セチルリン酸亜鉛、セチルリン酸カルシウム、セチルリン酸亜鉛ナトリウムなどが挙げられる。
- 20

有色顔料の具体例としては、酸化鉄、水酸化鉄、チタン酸鉄の無機赤色顔料； $\gamma$ -酸化鉄などの無機褐色系顔料；黄酸化鉄、黄土などの無機黄色系顔料；黒酸化鉄、カーボンブラックなどの無機黒色顔料；マンガバイオレット、コバ

ルトバイオレットなどの無機紫色顔料；水酸化クロム、酸化クロム、酸化コバルト、チタン酸コバルトなどの無機緑色顔料；紺青、群青などの無機青色系顔料；タール系色素をレーキ化したもの；天然色素をレーキ化したもの；およびこれらの粉体を複合化した合成樹脂粉体などが挙げられる。

- 5 パール顔料の具体例としては、酸化チタン被覆マイカ、オキシ塩化ビスマス、酸化チタン被覆オキシ塩化ビスマス、酸化チタン被覆タルク、魚鱗箔、酸化チタン被覆着色雲母などが挙げられる。

金属粉末顔料としては、アルミニウムパウダー、銅パウダー、ステンレスパウダーなどが挙げられる。

- 10 タール色素としては、赤色3号、赤色104号、赤色106号、赤色201号、赤色202号、赤色204号、赤色205号、赤色220号、赤色226号、赤色227号、赤色228号、赤色230号、赤色401号、赤色505号、黄色4号、黄色5号、黄色202号、黄色203号、黄色204号、黄色401号、青色1号、青色2号、青色201号、青色404号、緑色3号、緑色201号、緑色204号、緑色205号、橙色201号、橙色203号、橙色204号、橙色206号、橙色207号などが挙げられる。
- 15

天然色素としては、カルミン酸、ラッカイン酸、カルサミン、ブラジリン、クロシンなどから選ばれる粉体が挙げられる。これらの粉体は本発明の効果を妨げない範囲で、粉体の複合化や一般油剤、シリコーン油、フッ素化合物、界面活性剤などで処理したもの、反応性を持つオルガノヒドロジェンポリシロキサン、加水分解性アルコキシシラン基を有するオルガノポリシロキサン、加水分解性シリル基を有するアクリル-シリコーン系共重合体なども使用することができ、必要に応じて1種、または2種以上を組み合わせ用いることができる。

20

また、粉体（H1）および／または着色剤（H2）の一部は、ジメチルポリシロキサンを架橋した構造を有する架橋型球状ジメチルポリシロキサン微粉末、架橋型球状ポリメチルシルセスキオキサン微粉末、疎水化シリカ、または架橋型球状ポリシロキサングム表面をポリメチルシルセスキオキサン粒子で被覆して得られる微粉末であることが好ましい。さらに、粉体（H1）および／または着色剤（H2）の一部は、フッ素原子を有することも好ましい。

粉体（H1）および／または着色剤（H2）の配合量は、化粧品全体の0.1～99質量%の範囲が好ましい。特に、化粧品が粉末固形化粧料の場合には、粉体（H1）および／または着色剤（H2）の配合量は化粧品全体の80～99質量%の範囲が好ましい。

#### （I）界面活性剤：

本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、その目的に応じて、界面活性剤（I）を1種単独でまたは2種以上を組み合わせることもできる。このような界面活性剤（I）としては、アニオン性、カチオン性、非イオン性および両性のものがあるが、本発明においては特に制限されるものではなく、通常の化粧品に使用されるものであれば、いずれのものも使用することができる。

アニオン性界面活性剤としては、ステアリン酸ナトリウムやパルミチン酸トリエタノールアミンなどの脂肪酸セッケン、アルキルエーテルカルボン酸およびその塩、アミノ酸と脂肪酸の縮合物塩、アルカンスルホン酸塩、アルケンスルホン酸塩、脂肪酸エステルのスルホン酸塩、脂肪酸アミドのスルホン酸塩、ホルマリン縮合系スルホン酸塩、アルキル硫酸エステル塩、第二級高級アルコール硫酸エステル塩、アルキルおよびアリルエーテル硫酸エステル塩、脂肪酸エステルの硫酸エステル塩、脂肪酸アルキロールアミドの硫酸エステル塩、ロ

ート油などの硫酸エステル塩類、アルキルリン酸塩、エーテルリン酸塩、アルキルア릴エーテルリン酸塩、アミドリン酸塩、N-アシルアミノ酸系活性剤などが挙げられる。

カチオン性界面活性剤としては、アルキルアミン塩、ポリアミンおよびアミノアルコール脂肪酸誘導体などのアミン塩、アルキル四級アンモニウム塩、芳香族四級アンモニウム塩、ピリジウム塩、イミダゾリウム塩などが挙げられる。

非イオン性界面活性剤としては、ソルビタン脂肪酸エステル、グリセリン脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル、ショ糖脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシプロピレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、ポリオキシエチレン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビトール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレングリセリン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンプロピレングリコール脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンヒマシ油、ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油、ポリオキシエチレンフィトスタノールエーテル、ポリオキシエチレンフィトステロールエーテル、ポリオキシエチレンコレスタノールエーテル、ポリオキシエチレンコレステリルエーテル、アルカノールアミド、糖エーテル、糖アミドなどが挙げられる。また、直鎖状または分岐状ポリオキシアルキレン変性オルガノポリシロキサンや直鎖状または分岐状ポリオキシアルキレン・アルキル共変性オルガノポリシロキサンなどの分子中にポリオキシアルキレン鎖を有する直鎖状または分岐状のシリコーン、直鎖状または分岐状ポリグリセリン変性オルガノポリシロキサンや直鎖状または分岐状ポリグリセリン・アルキル共変性オルガノポリシロキサンなどの分子中にポリグリセリン鎖を有する直鎖状または分岐状のシリコーン

なども挙げられる。

両性界面活性剤としては、ベタイン、アミノカルボン酸塩、イミダゾリン誘導体、アミドアミン型界面活性剤などが挙げられる。

本発明に用いられる界面活性剤 (I) の親水性－親油性バランス (HLB)

5 は 2～8 であることが好ましい。

界面活性剤 (I) の配合量は、化粧品全体の 0.1～20 質量%、特に好ましくは 0.2～10 質量%の範囲が望ましい。

(J) 架橋型オルガノポリシロキサン：

10 本発明に係るシリコーン系室温固化組成物 (D) および化粧品には、その目的に応じて、架橋型オルガノポリシロキサン (J) を 1 種単独でまたは 2 種以上を組み合わせ用いることもできる。

この架橋型オルガノポリシロキサン (J) は、粘度が 0.65～10.0 m<sup>2</sup>/秒 (25℃) の低粘度シリコーンを含有し、膨潤するものであることが好ましい。このときの低粘度シリコーンの含有量は、架橋型オルガノポリシロキサン (J) の自重以上であることが好ましい。この架橋型オルガノポリシロキサン (J) は、その分子中のケイ素原子に直接結合した水素原子と 2 つ以上のビニル性反応部位を分子中に有する架橋剤とが反応することにより、架橋構造を形成するものであることが好ましい。さらに、この架橋型オルガノポリシロキサンは、ポリオキシアルキレン、ポリグリセリン、アルキル、アルケニル、  
15 アリールおよびフルオロアルキルからなる群から選択される少なくとも 1 種の部位を架橋分子中に含有することが好ましい。

このような架橋型オルガノポリシロキサン (J) の配合量は、シリコーン系室温固化組成物 (D) の総量に対して 0.1～30.0 質量%であることが好ましく、より好ましくは 1.0～10.0 質量%が望ましい。また、架橋型オ

ルガノポリシロキサン（J）を化粧品へ配合する場合には、その配合量は、化粧品全体の0.1～50質量%、特に好ましくは0.5～30質量%の範囲が望ましい。

（K）シリコーン樹脂：

- 5 本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、その目的に応じて、シリコーン樹脂（K）を1種単独でまたは2種以上を組み合わせる用いることもできる。

- シリコーン樹脂（K）は、アクリル／シリコーンのグラフトまたはブロック共重合体のアクリルシリコーン樹脂であることが好ましい。また、ピロリドン、  
10 長鎖アルキル、ポリオキシアルキレン、フルオロアルキルおよびカルボン酸などのアニオンからなる群から選択される少なくとも1種の部位を分子中に含有するアクリルシリコーン樹脂を使用することもできる。

- また、シリコーン樹脂（K）は、1官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物（MQ）、1官能性シロキシ基と2官能性シロ  
15 キシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物（MDQ）、1官能性シロキシ基と3官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物（MDT）、および1官能性シロキシ基と2官能性シロキシ基と3官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物（MDTQ）から選択されるシリコーン網状化合物であることが好ましい。

- 20 また、シリコーン樹脂（K）は、ピロリドン、長鎖アルキル、ポリオキシアルキレン、フルオロアルキルおよびアミノ基からなる群から選択される少なくとも1種の部位を分子中に含有するシリコーン網状化合物を使用することもできる。

本発明では、このようなシリコーン樹脂のうち、シリコーン系室温固化組成

物（D）においては、アクリルシリコーン樹脂が特に好ましい。

- シリコーン樹脂（K）の配合量は、シリコーン系室温固化組成物（D）の総量に対して好ましくは0.1～20質量%、より好ましくは1～10質量%が望ましい。また、シリコーン樹脂（K）を化粧品へ配合する場合には、その
- 5 配合量は、化粧品全体の0.1～20質量%、特に好ましくは、1～10質量%の範囲が望ましい。

- シリコーン樹脂（K）として、アクリル／シリコーンのグラフトまたはブロック共重合体やシリコーン網状化合物などのシリコーン樹脂を低粘度シリコーン油や揮発性シリコーン油、およびその他の溶剤に溶解させたものを配合して
- 10 もよいが、いずれの場合も、シリコーン樹脂（K）の配合量が上記範囲となるように配合することが望ましい。

その他の添加剤：

- 本発明に係るシリコーン系室温固化組成物（D）および化粧品には、本発明の効果を妨げない範囲で通常の化粧品に使用される成分、たとえば、油溶性ゲル化剤、有機変性粘土鉱物、樹脂、制汗剤、紫外線吸収剤、紫外線吸収散乱剤、
- 15 保湿剤、防腐剤、抗菌剤、香料、塩類、酸化防止剤、pH調整剤、キレート剤、清涼剤、抗炎症剤、美肌用成分（美白剤、細胞賦活剤、肌荒れ改善剤、血行促進剤、皮膚収斂剤、抗脂漏剤など）、ビタミン類、アミノ酸類、核酸、ホルモン、包接化合物、毛髪用固形化剤などを添加することができる。

- 20 油溶性ゲル化剤としては、アルミニウムステアレート、マグネシウムステアレート、ジンクミリステートなどの金属セッケン；N-ラウロイル-L-グルタミン酸、 $\alpha$ ,  $\gamma$ -ジ- $n$ -ブチルアミンなどのアミノ酸誘導体；デキストリンパルミチン酸エステル、デキストリンステアリン酸エステル、デキストリン2-エチルヘキサン酸パルミチン酸エステルなどのデキストリン脂肪酸エステ

ル；ショ糖パルミチン酸エステル、ショ糖ステアリン酸エステルなどのショ糖脂肪酸エステル；フラクトオリゴ糖ステアリン酸エステル、フラクトオリゴ糖2-エチルヘキサン酸エステル等のフラクトオリゴ糖脂肪酸エステル；モノベンジリデンソルビトール、ジベンジリデンソルビトールなどのソルビトールのベンジリデン誘導体；ジメチルベンジルドデシルアンモニウムモンモリロナイトクレー、ジメチルジオクタデシルアンモニウムモンモリロナイトクレーなどの有機変性粘土鉱物などが挙げられる。

制汗剤としては、アルミニウムクロロハイドレート、塩化アルミニウム、アルミニウムセスキクロロハイドレート、ジルコニルヒドロキシクロライド、アルミニウムジルコニウムヒドロキシクロライド、アルミニウムジルコニウムグリシン錯体などが挙げられる。

紫外線吸収剤としては、パラアミノ安息香酸などの安息香酸系紫外線吸収剤、アントラニル酸メチルなどのアントラニル酸系紫外線吸収剤、サリチル酸メチルなどのサリチル酸系紫外線吸収剤、パラメトキシケイ皮酸オクチルなどのケイ皮酸系紫外線吸収剤、2, 4-ジヒドロキシベンゾフェノンなどのベンゾフェノン系紫外線吸収剤、ウロカニン酸エチルなどのウロカニン酸系紫外線吸収剤、4-tert-ブチル-4'-メトキシ-ジベンゾイルメタンなどのジベンゾイルメタン系紫外線吸収剤などが挙げられる。

紫外線吸収散乱剤としては、微粒子酸化チタン、微粒子鉄含有酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、微粒子酸化セリウムおよびそれらの複合体などの紫外線を吸収散乱する粉体が挙げられる。

保湿剤としては、グリセリン、ソルビトール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1, 3-ブチレングリコール、ペンチレングリコール、グルコース、キシリトール、マルチトール、ポリエチレングリコール、ヒアル



ロン酸、コンドロイチン硫酸、ピロリドンカルボン酸塩、ポリオキシエチレンメチルグルコシド、ポリオキシプロピレンメチルグルコシドなどが挙げられる。

防菌防腐剤としては、パラオキシ安息香酸アルキルエステル、安息香酸、安息香酸ナトリウム、ソルビン酸、ソルビン酸カリウム、フェノキシエタノール

5   などが挙げられる。

抗菌剤としては、安息香酸、サリチル酸、石炭酸、ソルビン酸、パラオキシ安息香酸アルキルエステル、パラクロルメタクレゾール、ヘキサクロロフェン、塩化ベンザルコニウム、塩化クロルヘキシジン、トリクロロカルバニリド、感光素、フェノキシエタノールなどが挙げられる。

10   塩類としては、無機塩、有機酸塩、アミン塩およびアミノ酸塩が挙げられる。無機塩としては、たとえば、塩酸、硫酸、炭酸、硝酸等の無機酸のナトリウム塩、カリウム塩、マグネシウム塩、カルシウム塩、アルミニウム塩、ジルコニウム塩、亜鉛塩などが挙げられる。有機酸塩としては、たとえば、酢酸、デヒドロ酢酸、クエン酸、りんご酸、コハク酸、アスコルビン酸、ステアリン酸等

15   の有機酸類の塩が挙げられる。アミン塩およびアミノ酸塩としては、たとえば、トリエタノールアミン等のアミン類の塩、グルタミン酸等のアミノ酸類の塩などが挙げられる。また、ヒアルロン酸、コンドロイチン硫酸等の塩、アルミニウムジルコニウムグリシン錯体、さらには、化粧品処方の中で使用される酸-アルカリの中和塩等も使用することができる。

20   酸化防止剤としては、トコフェロール、ブチルヒドロキシアニソール、ジブチルヒドロキシトルエン、フィチン酸など、pH調整剤としては、乳酸、クエン酸、グリコール酸、コハク酸、酒石酸、D-リンゴ酸、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素アンモニウムなど、キレート剤としては、アラニン、エデト酸ナトリウム塩、ポリリン酸ナトリウム、メタリン酸ナトリウム、

リン酸など、清涼剤としては、L-メントール、カンフルなど、抗炎症剤としては、アラントイン、グリチルリチン酸およびその塩、グリチルレチン酸およびグリチルレチン酸ステアシル、トラネキサム酸、アズレンなどが挙げられる。

美肌用成分としては、胎盤抽出液、アルブチン、グルタチオン、ユキノシタ

- 5 抽出物などの美白剤、ロイヤルゼリー、感光素、コレステロール誘導体、幼牛血液抽出液などの細胞賦活剤、肌荒れ改善剤、ノニル酸ワレニルアミド、ニコチン酸ベンジルエステル、ニコチン酸 $\beta$ -ブトキシエチルエステル、カプサイシン、ジンゲロン、カンタリスチンキ、イクタモール、カフェイン、タンニン酸、 $\alpha$ -ボルネオール、ニコチン酸トコフェロール、イノシトールヘキサニコ
- 10 チネート、シ克蘭デレート、シンナリジン、トラゾリン、アセチルコリン、ベラパミル、セファランチン、 $\gamma$ -オリザノールなどの血行促進剤、酸化亜鉛、タンニン酸などの皮膚収斂剤、イオウ、チアントロールなどの抗脂漏剤などが挙げられる。

- ビタミン類としては、ビタミンA油、レチノール、酢酸レチノール、パルミ
- 15 チン酸レチノールなどのビタミンA類；リボフラビン、酪酸リボフラビン、フラビンアデニンヌクレオチドなどのビタミンB<sub>2</sub>類；ピリドキシン塩酸塩、ピリドキシンジオクタノエート、ピリドキシントリパルミテートなどのビタミンB<sub>6</sub>類；ビタミンB<sub>12</sub>およびその誘導体；ビタミンB<sub>15</sub>およびその誘導体などのビタミンB類；L-アスコルビン酸、L-アスコルビン酸ジパルミチン
- 20 酸エステル、L-アスコルビン酸-2-硫酸ナトリウム、L-アスコルビン酸リン酸ジエステルジカリウムなどのビタミンC類；エルゴカルシフェロール、コレカルシフェロールなどのビタミンD類； $\alpha$ -トコフェロール、 $\beta$ -トコフェロール、 $\gamma$ -トコフェロール、酢酸d,l- $\alpha$ -トコフェロール、ニコチン酸d,l- $\alpha$ -トコフェロール、コハク酸d,l- $\alpha$ -トコフェロールなどのビタミ

ンE類；ビタミンH；ビタミンP；ニコチン酸、ニコチン酸ベンジル、ニコチン酸アミドなどのニコチン酸類；パントテン酸カルシウム、D-パントテニルアルコール、パントテニルエチルエーテル、アセチルパントテニルエチルエーテルなどのパントテン酸類；ビオチンなどが挙げられる。

- 5 アミノ酸類としては、グリシン、ヴァリン、ロイシン、イソロイシン、セリン、トレオニン、フェニルアラニン、アルギニン、リジン、アスパラギン酸、グルタミン酸、シスチン、システイン、メチオニン、トリプトファンなどが挙げられる。

核酸としては、デオキシリボ核酸などが挙げられる。

- 10 ホルモンとしては、エストラジオール、エテニルエストラジオールなどが挙げられる。

毛髪固定用高分子化合物としては、両性、アニオン性、カチオン性または非イオン性の各高分子化合物が挙げられ、ポリビニルピロリドン、ビニルピロリドン／酢酸ビニル共重合体等のポリビニルピロリドン系高分子化合物；メチル

- 15 ビニルエーテル／無水マレイン酸アルキルハーフエステル共重合体等の酸性ビニルエーテル系高分子化合物；酢酸ビニル／クロトン酸共重合体等の酸性ポリ酢酸ビニル系高分子；(メタ)アクリル酸／アルキル(メタ)アクリレート共重合体；(メタ)アクリル酸／アルキル(メタ)アクリレート／アルキルアクリルアミド共重合体等の酸性アクリル系高分子化合物；N-メタクリロイルエチル
- 20 -N、N-ジメチルアンモニウム・ $\alpha$ -N-メチルカルボキシベタイン／アルキル(メタ)アクリレート共重合体、ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート／ブチルアミノエチルメタクリレート／アクリル酸オクチルアミド共重合体等の両性アクリル系高分子化合物が挙げられる。また、セルロースまたはその誘導体、ケラチンおよびコラーゲンまたはその誘導体等の天然由来高分子化合

物も好適に用いることができる。

## 実施例

以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれ  
5 ら実施例に限定されるものではない。なお、特に断りのない限り、「%」は「質  
量%」を意味するものとする。

### <合成例 1>

#### (オレフィン系ワックスの合成)

十分に窒素置換した内容積 2 リットルのステンレス製オートクレーブにヘキ  
10 サン 1 0 0 0 m l、ビニルノルボルネン (5-ビニルビシクロ [2. 2. 1]  
ヘプト-2-エン) 5 0 m l を装入し、水素を 0. 3 M P a (ゲージ圧) とな  
るまで導入した。次いで、系内の温度を 1 5 0 °C に昇温した後、トリイソブチ  
ルアルミニウム 0. 3 ミリモル、トリフェニルカルベニウムテトラキス (ペン  
タフルオロフェニル) ボレート 0. 0 0 4 ミリモル、(t-ブチルアミド) ジメ  
15 チル (テトラメチル- $\eta^5$ -シクロペンタジエニル) シランチタンジクロライ  
ド (シグマアルドリッチ社製) 0. 0 2 ミリモルをエチレンで圧入することに  
、より重合を開始した。その後、エチレンのみを連続的に供給することにより全  
圧を 2. 9 M P a (ゲージ圧) に保ち、1 5 0 °C で 2 0 分間重合を行った。少  
量のエタノールを系内に添加することにより重合を停止した後、未反応のエチ  
20 レンおよびビニルノルボルネンをパージした。得られたポリマー溶液を、1 0  
0 °C 減圧下で一晩乾燥した。

以上のようにして 1, 0 0 0 炭素あたりの不飽和基数が 1 1. 8 個、ビニル  
ノルボルネン含有量が 1 0. 1 重量% (不飽和基含有量 (平均) = 1. 1 個/  
分子) であり、密度が 9 5 6 k g / m<sup>3</sup> であり、融点が 1 1 7 °C であり、針入

硬度が1以下であり、 $M_n$ が1,300であり、 $M_w$ が3,700であり、 $M_w/M_n$ が2.8である不飽和基含有ポリエチレンワックス(A-1)(オレフィン系ワックス(A-1))を得た。

#### <合成例2>

#### 5 (オレフィン系ワックスの合成)

十分に窒素置換した内容積2リットルのステンレス製オートクレーブにヘキサン950mlおよびプロピレン50ml、イソブレン70mlを装入し、水素を0.2MPa(ゲージ圧)となるまで導入した。次いで、系内の温度を150℃に昇温した後、トリイソブチルアルミニウム0.3ミリモル、トリフェニルカルベニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレート0.004ミリモル、(t-ブチルアミド)ジメチル(テトラメチル- $\eta^5$ -シクロペンタジエニル)シランチタンジクロライド(シグマアルドリッチ社製)0.02ミリモルをエチレンで圧入することにより重合を開始した。その後、エチレンのみを連続的に供給することにより全圧を2.9MPa(ゲージ圧)に保ち、150℃で20分間重合を行った。少量のエタノールを系内に添加することにより重合を停止した後、未反応のエチレンおよびプロピレンをパージした。得られたポリマー溶液を、100℃減圧下で一晩乾燥した。

以上のようにして1,000炭素あたりの不飽和基数が6.0個、イソブレン含有量が2.4重量%(不飽和基含有量(平均)=1.5個/分子)であり、密度が915kg/m<sup>3</sup>であり、融点が104℃であり、針入硬度が4であり、 $M_n$ が3,500であり、 $M_w$ が5,600であり、 $M_w/M_n$ が1.6である不飽和基含有ポリエチレンワックス(A-2)(オレフィン系ワックス(A-2))を得た。

## &lt;合成例 3&gt;

## (オレフィン系ワックスの合成)

十分に窒素置換した内容積 2 リットルのステンレス製オートクレーブにヘキサン 950 ml、ビニルノルボルネン (5-ビニルビシクロ [2. 2. 1] ヘプター-2-エン) 50 ml を装入し、水素を 0. 15 MPa (ゲージ圧) となるまで導入した。次いで、系内の温度を 150℃ に昇温した後、トリイソブチルアルミニウム 0. 3 ミリモル、トリフェニルカルベニウムテトラキス (ペンタフルオロフェニル) ボレート 0. 004 ミリモル、(t-ブチルアミド) ジメチル (テトラメチル- $\eta^5$ -シクロペンタジエニル) シランチタンジクロライド (シグマアルドリッチ社製) 0. 02 ミリモルをエチレンで圧入することにより重合を開始した。その後、エチレンのみを連続的に供給することにより全圧を 2. 9 MPa (ゲージ圧) に保ち、150℃ で 20 分間重合を行った。少量のエタノールを系内に添加することにより重合を停止した後、未反応のエチレンおよびビニルノルボルネンをパージした。得られたポリマー溶液を、10

15 0℃減圧下で一晩乾燥した。

以上のようにして 1, 000 炭素あたりの不飽和基数が 11. 2 個、ビニルノルボルネン含有量が 9. 6 重量% (不飽和基含有量 (平均) = 1. 2 個/分子) であり、密度が 963 kg/m<sup>3</sup> であり、融点が 125℃ であり、Mn が 1, 500 であり、針入硬度が 1 以下であり、Mw が 4, 700 であり、Mw/Mn が 3. 1 である不飽和基含有ポリエチレンワックス (A-3) (オレフィン系ワックス (A-3)) を得た。

20

## &lt;合成例 4&gt;

## (オレフィン系ワックスの合成)

十分に窒素置換した内容積 2 リットルのステンレス製オートクレーブにヘキ

サン 970 ml およびプロピレン 30 ml、ビニルノルボルネン（5-ビニル  
ビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン） 50 ml を装入し、水素を 0. 3  
MPa（ゲージ圧）となるまで導入した。次いで、系内の温度を 150℃に昇  
温した後、トリイソブチルアルミニウム 0. 3 ミリモル、トリフェニルカルベ  
5 ニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート 0. 004 ミリモル、  
（*t*-ブチルアミド）ジメチル（テトラメチル- $\eta^5$ -シクロペンタジエニル）  
シランチタンジクロライド（シグマアルドリッチ社製） 0. 02 ミリモルをエ  
チレンで圧入することにより重合を開始した。その後、エチレンのみを連続的  
に供給することにより全圧を 2. 9 MPa（ゲージ圧）に保ち、150℃で 2  
10 0 分間重合を行った。少量のエタノールを系内に添加することにより重合を停  
止した後、未反応のエチレンおよびビニルノルボルネンをパージした。得られ  
たポリマー溶液を、100℃減圧下で一晩乾燥した。

以上のようにして 1, 000 炭素あたりの不飽和基数が 12. 8 個、ビニル  
ノルボルネン含有量が 11. 0 重量%（不飽和基含有量（平均）= 1. 1 個/  
15 分子）であり、密度が 919 kg/m<sup>3</sup> であり、融点が 107℃であり、Mn  
が 1, 200 であり、針入硬度が 13 であり、Mw が 3, 900 であり、Mw  
/Mn が 3. 3 である不飽和基含有ポリエチレンワックス（A-4）（オレフィ  
ン系ワックス（A-4））を得た。

#### <合成例 5>

#### 20 (オレフィン系ワックスの合成)

十分に窒素置換した内容積 2 リットルのステンレス製オートクレーブにヘキ  
サン 980 ml および 1-ブテン 20 ml、ビニルノルボルネン（5-ビニル  
ビシクロ [2. 2. 1] ヘプト-2-エン） 20 ml を装入し、水素を 0. 1  
MPa（ゲージ圧）となるまで導入した。次いで、系内の温度を 150℃に昇

温した後、トリイソブチルアルミニウム 0.3 ミリモル、トリフェニルカルベニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート 0.004 ミリモル、（*t*-ブチルアミド）ジメチル（テトラメチル- $\eta^5$ -シクロペンタジエニル）シランチタンジクロライド（シグマアルドリッチ社製）0.02 ミリモルをエチレンで圧入することにより重合を開始した。その後、エチレンのみを連続的に供給することにより全圧を 2.9 MPa（ゲージ圧）に保ち、150℃で 20 分間重合を行った。少量のエタノールを系内に添加することにより重合を停止した後、未反応のエチレンおよびビニルノルボルネンをパージした。得られたポリマー溶液を、100℃減圧下で一晩乾燥した。

- 10 以上のようにして 1,000 炭素あたりの不飽和基数が 5.0 個、ビニルノルボルネン含有量が 4.3 重量%（不飽和基含有量（平均）= 1.5 個/分子）であり、密度が 952 kg/m<sup>3</sup> であり、融点が 124℃ であり、針入硬度が 1 以下であり、M<sub>n</sub> が 4,200 であり、M<sub>w</sub> が 11,700 であり、M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub> が 2.8 である不飽和基含有ポリエチレンワックス（A-5）（オレフィン系ワックス（A-5））を得た。

#### <合成例 6>

##### （オレフィン系ワックスの合成）

- 20 十分に窒素置換した内容積 2 リットルのステンレス製オートクレーブにヘキサン 900 ml および 1-ブテン 100 ml、ビニルノルボルネン（5-ビニルビシクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン）30 ml を装入し、水素を 0.1 MPa（ゲージ圧）となるまで導入した。次いで、系内の温度を 150℃ に昇温した後、トリイソブチルアルミニウム 0.3 ミリモル、トリフェニルカルベニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート 0.004 ミリモル、（*t*-ブチルアミド）ジメチル（テトラメチル- $\eta^5$ -シクロペンタジエニル）



シランチタンジクロライド（シグマアルドリッチ社製）0.02ミリモルをエチレンで圧入することにより重合を開始した。その後、エチレンのみを連続的に供給することにより全圧を2.9MPa（ゲージ圧）に保ち、150℃で20分間重合を行った。少量のエタノールを系内に添加することにより重合を停止した後、未反応のエチレンおよびビニルノルボルネンをパージした。得られたポリマー溶液を、100℃減圧下で一晩乾燥した。

以上のようにしてビニルノルボルネン含有量が12.0重量%（不飽和基含有量（平均）＝1.0個／分子）であり、密度が869kg/m<sup>3</sup>であり、融点が68℃であり、針入硬度が70以上であり、Mnが800であり、Mwが2,300であり、Mw/Mnが2.9である不飽和基含有ポリエチレンワックス（A-6）（オレフィン系ワックス（A-6））を得た。

#### <調製例1>

ポリエチレンワックス（A-1）130gを、下記の平均構造式で表される片末端ヒドロジェンシリコーン（1）310g、キシレン2Lおよび塩化白金酸の3%イソプロパノール溶液0.5gとともにキシレン還流下で5時間反応させた。減圧、加熱下で溶剤を留去してシリコーン変性ワックス（B-1）を得た。

片末端ヒドロジェンシリコーン（1）：



#### 20 <調製例2>

片末端ヒドロジェンシリコーン（1）を下記の平均構造式で表される片末端ヒドロジェンシリコーン（2）240gに変更した以外は、調製例1と同様にしてシリコーン変性ワックス（B-2）を得た。

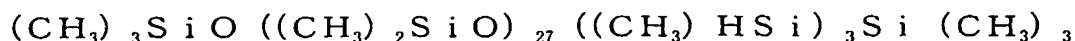
片末端ヒドロジェンシリコーン（2）：



<調製例 3>

片末端ハイドロジェンシリコーン (1) を下記の平均構造式で表されるハイドロジェンシリコーン (3) 80 g に変更した以外は、調製例 1 と同様にして  
5 シリコーン変性ワックス (B-3) を得た。

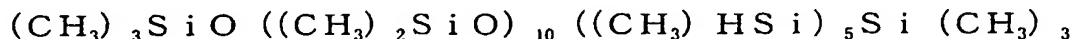
ハイドロジェンシリコーン (3) :



<調製例 4>

片末端ハイドロジェンシリコーン (1) を下記の平均構造式で表されるハイドロジェンシリコーン (4) 25 g に変更した以外は、調製例 1 と同様にして  
10 シリコーン変性ワックス (B-4) を得た。

ハイドロジェンシリコーン (3) :



<調製例 5>

15 ポリエチレンワックス (A-1) をポリエチレンワックス (A-2) 350 g に変更した以外は、調製例 1 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-5) を得た。

<調製例 6>

20 ポリエチレンワックス (A-1) をポリエチレンワックス (A-3) 150 g に変更した以外は、調製例 1 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-6) を得た。

<調製例 7>

ポリエチレンワックス (A-1) をポリエチレンワックス (A-4) 120 g に変更した以外は、調製例 1 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-7) を得た。

を得た。

<調製例 8>

ポリエチレンワックス (A-1) をポリエチレンワックス (A-5) 420 g に変更した以外は、調製例 1 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-8)

5    を得た。

<比較調製例 1>

ポリエチレンワックス (A-1) をポリエチレンワックス (A-6) 80 g に変更した以外は、調製例 3 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-9) を得た。

10    <実施例 1>

シリコーン変性ワックス (B-1) 50 質量部と、ジメチルポリシロキサン (10 mm<sup>2</sup>/秒、25℃) 50 質量部とを加熱溶融した後、均一に攪拌してシリコーン系室温固化組成物を製造した。得られた組成物について、室温固化性を評価した。

15    室温固化性：シリコーン系室温固化組成物を冷却して室温に戻したときに、固体で流動性のないものを「A」と、流動性のあるものを「B」と評価した。

<実施例 2～10>

各成分の配合を表 1 に示すように変更したこと以外は、実施例 1 と同様にしてシリコーン系室温固化組成物を製造し、得られた組成物について、室温固化  
20    性を評価した。得られた結果を表 1 に示す。なお、表中の数値は質量部を示す。

<比較例 1～4>

各成分の配合を表 2 に示すように変更したこと以外は、実施例 1 と同様にしてシリコーン系固化組成物を製造し、得られた組成物について、室温固化性を評価した。得られた結果を表 2 に示す。なお、表中の数値は質量部を示す。

表 1

[illegible]

表 2

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
シリコーン変性ワックス(B-1)	3	97		
シリコーン変性ワックス(B-2)				
シリコーン変性ワックス(B-3)				
シリコーン変性ワックス(B-4)				
シリコーン変性ワックス(B-5)				
シリコーン変性ワックス(B-6)				
シリコーン変性ワックス(B-7)				
シリコーン変性ワックス(B-8)				
シリコーン変性ワックス(B-9)			50	70
ジメチルポリシロキサン (10mm <sup>2</sup> /s、25°C)	97	3	50	30
室温固化性	B	B	B	B

## &lt;調製例 9&gt;

片末端ハイドロジェンシリコーン (2) の量を 240 g から 105 g に変更した以外は、調製例 2 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-10) を得た。

## 5 &lt;調製例 10&gt;

片末端ハイドロジェンシリコーン (1) を片末端ハイドロジェンシリコーン (2) 150 g に変更した以外は、調製例 6 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-11) を得た。

## &lt;調製例 11&gt;

10 ポリエチレンワックス (A-3) をポリエチレンワックス (A-4) 150 g に変更した以外は、調製例 10 と同様にしてシリコーン変性ワックス (B-12) を得た。

## &lt;実施例 11&gt;

(乳液)

15	(成分)	質量 (%)
	1. シリコーン変性ワックス (B-10)	2.0
	2. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	30.0
	3. デカメチルシクロペンタシロキサン	10.0
	4. トリオクタン酸グリセリル	5.0
20	5. ポリエーテル変性シリコーン (注1)	5.0
	6. 1, 3-ブチレングリコール	5.0
	7. 防腐剤	適量
	8. 香料	適量
	9. 精製水	43.0

(注1) 信越化学工業(株)製:KF-6017(商品名)

(製造方法)

A) 成分1～5を加熱溶解した。

B) 成分6～7および9を混合した後、上記A)で得られた溶解物に加えて乳

5 化した。

C) 上記B)で得られた乳化物を冷却し、成分8を加えて乳液を得た。

以上のようにして得られた乳液は、べたつきがなく、のび広がりも軽く、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、つやのある仕上がりが見られる乳液であることがわかった。

10 <実施例12>

(油中水型クリーム)

(成分)	質量 (%)
1. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	10.0
2. デカメチルシクロペンタシロキサン	7.0
15 3. トリオクタン酸グリセリル	5.0
4. ポリエーテル変性分岐型シリコーン (注1)	2.0
5. シリコーン変性ワックス (B-12)	1.0
6. ジプロピレングリコール	7.0
7. 防腐剤	適量
20 8. 香料	適量
9. 精製水	68.0

(注1) 信越化学工業(株)製:KF-6028(商品名)

(製造方法)

A) 成分1～5を加熱混合した。

B) 成分 6～9 を混合し、上記 A) で得られた混合物に加えて攪拌乳化した。

以上のようにして得られた油中水型クリームは、油っぽさ、べたつきがなく、のび広がりも軽くさっぱりとした、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、つやのある仕上がりが見られる油中水型クリームであることがわかった。

### 5 <実施例 13>

(油中水型クリーム)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-10)	2. 0
2. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	10. 0
10 3. 架橋型ポリエーテル変性シリコーン (注1)	5. 0
4. ジプロピレングリコール	10. 0
5. クエン酸ナトリウム	0. 2
6. エタノール	5. 0
7. 防腐剤	適 量
15 8. 香料	適 量
9. 精製水	67. 8

(注1) 信越化学工業(株)製: KSG-21 (商品名)

(製造方法)

A) 成分 1～3 を加熱溶解した

20 B) 成分 4～9 を混合溶解し、上記 A) で得られた溶解物に加えて攪拌乳化した。

以上のようにして得られた油中水型クリームは、油っぽさ、べたつきがなく、のび広がりも軽く、みずみずしいさっぱりとした使用性を持ち、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、マット感のある仕上がりが見られる油中水型クリ



ームであることがわかった。

<実施例 14>

(油中水型クリームメイクアップ下地)

(成分)		質量 (%)
5	1. 架橋型ポリエーテル変性シリコーン (注1)	4. 0
	2. 架橋型ジメチルポリシロキサン (注2)	1. 0
	3. ポリエーテル変性シリコーン (注3)	0. 5
	4. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	6. 0
	5. ジメチルポリシロキサン (20 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	2. 0
10	6. デカメチルシクロペンタシロキサン	3. 0
	7. 酸化チタン/シクロペンタシロキサン分散物 (注4)	10. 0
	8. シリコーン変性ワックス (B-12)	1. 0
	9. ジプロピレングリコール	5. 0
	10. クエン酸ナトリウム	0. 2
15	11. メチルセルロース (2%水溶液) (注5)	2. 5
	12. エタノール	3. 0
	13. 防腐剤	適 量
	14. 香料	適 量
	15. 精製水	61. 8
20	(注1) 信越化学工業 (株) 製: KSG-21 (商品名)	
	(注2) 信越化学工業 (株) 製: KSG-15 (商品名)	
	(注3) 信越化学工業 (株) 製: KF-6017 (商品名)	
	(注4) 信越化学工業 (株) 製: SPD-T1S (商品名)	
	(注5) 信越化学工業 (株) 製: メトロース65-SH4000 (商品名)	

## (製造方法)

A) 成分 1 ～ 8 を加熱混合した。

B) 成分 9 ～ 15 を混合溶解し、上記 A) で得られた混合物に加えて攪拌乳化した。

- 5 以上のようにして得られた油中水型メイクアップ下地は、油っぽさ、べたつきがなく、のび広がりも軽く、みずみずしいさっぱりとした使用性を持ち、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、マット感のある仕上がりが得られ、さらに紫外線カット効果のある化粧持ちの良い優れた油中水型メイクアップ下地であることがわかった。

## 10 &lt;実施例 15&gt;

## (水中油水型クリーム)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-11)	2. 0
2. 架橋型ジメチルポリシロキサン (注1)	15. 0
15 3. デカメチルシクロペンタシロキサン	10. 0
4. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	18. 0
5. ポリエーテル変性シリコーン (注2)	0. 7
6. プロピレングリコール	3. 0
7. ポリアクリルアミド系混合物 (注3)	0. 8
20 8. キサンタンガム (2%水溶液)	8. 0
9. 防腐剤	適 量
10. 香料	適 量
11. 精製水	42. 5

(注1) 信越化学工業 (株) 製: KSG-16 (商品名)

(注2) 信越化学工業(株)製:KF-6011 (商品名)

(注3) SEPIC製:セピゲル305 (商品名)

(製造方法)

A) 成分1~4を加熱混合した。

5 B) 成分5~11を混合溶解した。

C) 上記A) で得られた混合物を上記B) で得られた溶解物に加えて攪拌乳化した。

以上のようにして得られた水中油水型クリームは、のび広がり軽い、さっぱりとした使用性を持つ、優れた水中油水型クリームであることがわかった。

#### 10 <実施例16>

(油中水型固形クリーム)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-10)	30.0
2. ジメチルポリシロキサン (6mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	24.0
15 3. デカメチルシクロペンタシロキサン	24.0
4. ポリエーテル変性シリコーン (注1)	2.0
5. 1, 3-ブチレングリコール	2.0
6. 防腐剤	適量
7. 香料	適量
20 8. 精製水	18.0

(注1) 信越化学工業(株)製:KF-6017 (商品名)

(製造方法)

A) 成分1~4を加熱溶解した。

B) 成分5~8を混合溶解し、上記A) で得られた溶解物に加えて攪拌乳化し

た。

C) 上記B) で得られた乳化物を充填して製品を得た。

以上のようにして得られた油中水型固形クリームは、油剤が多いにもかかわ  
らず油っぽさ、べたつきがなく、のび広がりも軽く、さっぱりとした使用性を  
5 持ち、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、優れた油中水型固形クリーム  
であることがわかった。

#### <実施例 17>

(口紅)

(成分)		質量 (%)
10	1. シリコーン変性ワックス (B-12)	40.0
	2. ジメチルポリシロキサン ( $6\text{ mm}^2/\text{秒}$ ( $25^\circ\text{C}$ ))	30.0
	3. デカメチルシクロペンタシロキサン	26.0
	4. アクリルシリコーン樹脂 (注1)	4.0
	5. 顔料	適量
15	6. 防腐剤	適量
	7. 香料	適量

(注1) 信越化学工業(株)製: KP-545 (商品名)

(製造方法)

A) 成分1～3を加熱溶解した。

20 B) 成分4～6を混合分散し、上記A) で得られた溶解物に加えて均一に攪拌  
した。

C) 上記B) で得られた溶解物に成分7を添加し、充填して製品を得た。

以上のようにして得られた口紅は、油っぽさ、べたつきがなく、軽い滑りで  
のび広がりも良く、しかも、密着感に優れ、おさまりの良い化粧もちに優れた

口紅であることがわかった。

### <実施例 18>

(パウダーファンデーション)

(成分)		質量 (%)
5	1. セリサイト	40.0
	2. マイカ	10.0
	3. タルク	残 量
	4. 酸化チタン	10.0
	5. 微粒子酸化チタン	5.0
10	6. ステアリン酸マグネシウム	3.0
	7. 顔料	4.2
	8. シリコーン変性ワックス (B-10)	1.0
	9. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25°C))	3.0
	10. 防腐剤	適 量
15	11. 香料	適 量

(製造方法)

A) 成分 8～11 を混合した。

B) 成分 1～7 を混合した後、上記 A) で得られた混合物を加えて均一に混合した。

20 c) 上記 B) で得られた混合物を金型にプレス成型し、パウダーファンデーションを得た。

以上のようにして得られたパウダーファンデーションは、べたつきがなく、のび広がりも軽く、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、つやのある仕上がりが得られるパウダーファンデーションであることがわかった。

## &lt;実施例 19&gt;

(クリームファンデーション)

(成分)	質量 (%)
1. 架橋型ポリエーテル変性シリコーン (注1)	4. 0
5 2. トリオクタン酸グリセリル	3. 0
3. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	5. 0
4. デカメチルシクロペンタシロキサン	6. 0
5. シリコーン変性ワックス (B-11)	2. 0
6. フッ素変性ハイブリッドシリコーン複合粉体 (注2)	2. 5
10 7. 顔料	8. 0
8. アクリルシリコーン樹脂 (注3)	5. 0
9. ジプロピレングリコール	5. 0
10. クエン酸ナトリウム	0. 2
11. 防腐剤	適 量
15 12. 香料	適 量
13. 精製水	59. 3

(注1) 信越化学工業 (株) 製: KSG-21 (商品名)

(注2) 信越化学工業 (株) 製: KSP-200 (商品名)

(注3) 信越化学工業 (株) 製: KP-545 (商品名)

## 20 (製造方法)

A) 成分1～6を加熱混合した。

B) 成分9～13を混合溶解し、上記A) で得られた混合物に加えて攪拌乳化した。

C) 成分7～8を混合し、上記B) 得られた乳化物に加えて均一にした。

以上のようにして得られたクリームファンデーションは、べたつきがなく、のび広がりも軽く、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、マット感のある仕上がりが見られるクリームファンデーションであることがわかった。

# <実施例 20>

## 5 (固形ファンデーション)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-12)	30.0
2. ポリエチレンワックス	5.0
3. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	32.5
10 4. デカメチルシクロペンタシロキサン	28.5
5. アクリルシリコーン樹脂 (注1)	4.0
6. 顔料	適量
7. 防腐剤	適量
8. 香料	適量

## 15 (注1) 信越化学工業 (株) 製: KP-545 (商品名)

### (製造方法)

A) 成分 1～4 を加熱溶解した。

B) 成分 5～7 を混合分散し、上記 A) で得られた溶解物に加えて均一に攪拌した。

## 20 C) 上記 B) で得られた溶解物に成分 8 を添加し、充填して製品を得た。

以上のようにして得られた固形ファンデーションは、油っぽさ、べたつきがなく、軽い滑りでのび広がりも良く、しかも、密着感に優れ、おさまりの良い化粧もちに優れた固形ファンデーションであることがわかった。

## &lt;実施例 2 1&gt;

(油中水型コンパクトファンデーション)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-10)	30.0
5 2. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	24.0
3. デカメチルシクロペンタシロキサン	22.0
4. アクリルシリコーン樹脂 (注1)	4.0
5. トリメチルシロキシケイ酸 (注2)	1.0
6. ポリエーテル変性シリコーン (注3)	2.0
10 7. 顔料	適量
8. 1, 3-ブチレンジグリコール	2.0
9. 防腐剤	適量
10. 香料	適量
11. 精製水	15.0

15 (注1) 信越化学工業 (株) 製: KP-545 (商品名)

(注2) 信越化学工業 (株) 製: KF-7312J (商品名)

(注3) 信越化学工業 (株) 製: KF-6017 (商品名)

(製造方法)

A) 成分1~5を加熱溶解した。

20 B) 成分8~9および11を混合溶解し、上記A) で得られた溶解物に加えて  
攪拌乳化した。C) 成分6~7を混合分散し、上記B) で得られた乳化物に加えて均一に攪拌  
した。

D) 上記C) で得られた乳化物に成分10を添加し、充填して製品を得た。



以上のようにして得られた油中水型コンパクトファンデーションは、油剤が多いにもかかわらず油っぽさ、べたつきがなく、のび広がりも軽く、さっぱりとした使用性を持ち、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く化粧もちに優れた油中水型コンパクトファンデーションであることがわかった。

## 5 <実施例 2 2>

(アイシャドウ)

(成分)		質量 (%)
1.	セリサイト	40.0
2.	マイカ	10.0
10 3.	タルク	残 量
4.	酸化チタン	10.0
5.	微粒子酸化チタン	5.0
6.	ステアリン酸マグネシウム	3.0
7.	顔料	適 量
15 8.	オクチルドデカノール	3.0
9.	ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	8.0
10 10.	シリコーン変性ワックス (B-11)	2.0
11.	防腐剤	適 量
12.	香料	適 量

## 20 (製造方法)

A) 成分 8～11 を加熱混合した。

B) 成分 1～7 を混合した後、上記 A) で得られた混合物を加えて均一に混合した。

C) 成分 14 を上記 B) で得られた混合物に添加した。

以上のようにして得られたアイシャドウは、べたつきがなく、のび広がりも軽く、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、つやのある仕上がりが得られる化粧持ちの良いアイシャドウであることがわかった。

<実施例 23>

5 (パウダーアイブロウ)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-12)	3.0
2. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	5.0
3. トリオクタン酸グリセリル	2.0
10 4. シリコーン処理マイカ	40.0
5. シリコーン処理硫酸バリウム	15.0
6. シリコーン処理酸化チタン	10.0
7. シリコーン処理顔料	適量
8. ハイブリッドシリコーン複合粉体 (注1)	1.5
15 9. 球状ポリメチルシルセスキオキサン粉体 (注2)	2.5
10. シリコーン処理タルク	残量
11. 防腐剤	適量
12. 香料	適量

(注1) 信越化学工業 (株) 製: KSP-100 (商品名)

20 (注2) 信越化学工業 (株) 製: KMP-590 (商品名)

(製造方法)

A) 成分4~12を混合、均一にした。

B) 成分1~3を混合溶解し、上記A) で得られた混合物に加えて均一にした。

C) 上記B) で得られた混合物を金型にプレス成型し、パウダーアイブロウを

得た。

以上のようにして得られたアイブロウは、べたつきがなく、のび広がりも軽く、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、つやのある仕上がりが得られる化粧持ちの良いアイブロウであることがわかった。

## 5 <実施例 24>

(ペンシル状アイブロウ)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-10)	40.0
2. ポリエチレンワックス	10.0
10 3. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	40.0
4. デカメチルシクロペンタシロキサン	5.0
5. アクリルシリコーン樹脂 (注1)	5.0
6. 顔料	適量
7. 防腐剤	適量
15 8. 香料	適量

(注1) 信越化学工業(株) 製: KP-545 (商品名)

(製造方法)

A) 成分1～4を加熱溶解した。

B) 成分5～7を混合分散し、上記A)で得られた溶解物に加えて均一に攪拌

20 した。

C) 上記B)で得られた溶解物に成分8を添加し、充填して製品を得た。

以上のようにして得られたペンシル状アイブロウは、粉飛びがなく滑り性に優れ、また持ちの良い化粧効果に優れた、ペンシル状アイブロウであることがわかった。

## &lt;実施例 25&gt;

(ヘアクリーム)

(成分)	質量 (%)
1. 実施例 1 で得たシリコーン系室温固化組成物	4. 0
5 2. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	1. 0
3. デカメチルシクロペンタシロキサン	8. 0
4. 塩化ステアリルトリメチルアンモニウム	1. 5
5. グリセリン	3. 0
6. プロピレングリコール	5. 0
10 7. ヒドロキシエチルセルロース	0. 2
8. 防腐剤	適 量
9. 香料	適 量
10. 精製水	75. 3

(製造方法)

15 A) 成分 1～3 を加熱溶解した。

B) 成分 4～8 および 10 を均一に混合溶解した。

C) 上記 B) で得られた溶解物を上記 A) で得られた溶解物に加えて乳化後、冷却して成分 9 を加えた。

以上のようにして得られたヘアクリームは、塗布時の伸び、使用後の髪の柔  
 20 軟性、なめらかさ、まとまり具合、しっとり感、ツヤにおいて、きわめて優れた効果を示すもので、総合的に非常に優れたヘアクリームであることがわかった。

## &lt;実施例 26&gt;

(コンディショニングムース)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-12)	0.5
2. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	2.0
3. 架橋型ジメチルポリシロキサン (注1)	0.5
5 4. トリオクタン酸グリセリル	1.5
5. グリセリン	3.0
6. 塩化ステアリルジメチルベンジルアンモニウム	0.5
7. ポリオキシエチレン硬化ヒマシ油	0.5
8. エタノール	7.0
10 9. 防腐剤	適量
10. 香料	適量
11. 精製水	残量
12. 液化石油ガス	5.0

(注1) 信越化学工業(株)製: KSG-16 (商品名)

# 15 (製造方法)

A) 成分1～4を加熱溶解した。

B) 成分5～9および11を均一に混合溶解した。

C) 上記B)で得られた溶解物を上記A)で得られた溶解物に加えて乳化後、冷却して成分10を加えた。

20 D) 上記C)得られた乳化物をエアゾール缶に充填し、コンディショニンググムースを得た。

以上のようにして得られたコンディショニンググムースは、しっとり感、柔軟性、なめらかさに優れ、油性感のない良好な感触のもので、しかも、密着感に優れ、おさまりも良く、マット感のある仕上がりが見られるコンディショニン

グムースであることがわかった。

<実施例 27>

(ロールオンタイプ制汗剤)

(成分)	質量 (%)
5 1. シリコーン変性ワックス (B-11)	5.0
2. 架橋型ポリエーテル変性シリコーン (注1)	20.0
3. ジメチルポリシロキサン ( $6\text{ mm}^2/\text{秒}$ ( $25^\circ\text{C}$ ))	10.0
4. 架橋型ジメチルポリシロキサン (注2)	15.0
5. デカメチルシクロペンタシロキサン	30.0
10 6. アルミニウムジルコニウムテトラクロロハイドロイト	20.0
7. 香料	適量

(注1) 信越化学工業 (株) 製: KSG-21 (商品名)

(注1) 信越化学工業 (株) 製: KSG-15 (商品名)

(製造方法)

15 A) 成分1～5を加熱混合した。

B) 上記A) で得られた混合物に成分6および7を加えて、均一に分散した。

以上のようにして得られたロールオンタイプの制汗剤は、のびが軽く、清涼感があってさっぱりとして、べたつきや油感がなく、温度や経時による変化もなく、使用性も安定性も非常に優れているものであった。

20 <実施例 28>

(油中水型タイプ制汗剤)

(成分)	質量 (%)
1. シリコーン変性ワックス (B-11)	2.0
2. 架橋型ポリエーテル変性シリコーン (注1)	7.0

	3. デカメチルシクロペンタシロキサン	7. 0
	4. トリオクタン酸グリセリル	8. 0
	5. 1, 3-ブチレングリコール	5. 0
	6. クエン酸ナトリウム	0. 2
5	7. アルミニウムクロロハイドレート	20. 0
	8. 香料	適 量
	9. 精製水	50. 8

(注1) 信越化学工業(株)製: KSG-21 (商品名)

(製造方法)

- 10 A) 成分1～4を加熱混合した。  
 B) 成分5～6および8を混合し、成分7、8を加え溶解した。  
 C) 上記A)で得られた混合物に上記B)で得られた溶解物を加え攪拌して乳化した。

- 15 以上のようにして得られた油中水型タイプの制汗剤は、のびが軽く、清涼感があってさっぱりとして、べたつきや油感がなく、温度や経時による変化もなく、使用性も安定性も非常に優れている油中水型タイプの制汗剤であった。

#### <実施例29>

(固形制汗剤)

	(成分)	質量 (%)
20	1. シリコーン変性ワックス (B-10)	22. 0
	2. ポリエチレンワックス	4. 0
	3. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	22. 0
	4. デカメチルシクロペンタシロキサン	22. 0
	5. 架橋型ジメチルポリシロキサン (注1)	15. 0

6. アルミニウムジルコニウムテトラクロロハイドレート 15.0

7. 香料 適量

(注1) 信越化学工業(株)製: KSG-16 (商品名)

(製造方法)

5 A) 成分1～5を加熱均一にした。

B) 成分6、7を上記A)で得られた混合物に混合分散した。

C) 上記B)で得られた混合物を充填して製品を得た。

以上のようにして得られた固形制汗剤は、のびが軽く、清涼感があってさっぱりとして、べたつきや油感がなく、温度や経時による変化もなく、使用性も

10 安定性も非常に優れている固形制汗剤であった。

### <実施例30>

(固形制汗剤)

(成分)	質量(%)
------	-------

1. シリコーン変性ワックス (B-10)	26.0
-----------------------	------

15 2. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	22.0
--	------

3. デカメチルシクロペンタシロキサン	22.0
---------------------	------

4. 架橋型ジメチルポリシロキサン (注1)	15.0
------------------------	------

5. アルミニウムジルコニウムテトラクロロハイドレート (グリシン塩)	15.0
--	------

20 6. 香料	適量
----------	----

(注1) 信越化学工業(株)製: KSG-16 (商品名)

(製造方法)

A) 成分1～4を加熱均一にした。

B) 成分5、6を上記A)で得られた混合物に混合分散した。



C) 上記B) で得られた混合物を充填して製品を得た。

以上のようにして得られた固形制汗剤は、のびが軽く、清涼感があってさっぱりとして、べたつきや油感がなく、温度や経時による変化もなく、使用性も安定性も非常に優れている固形制汗剤であった。

### 5 <実施例 3 1>

(UVカット油中水型クリーム)

(成分)		質量 (%)
	1. シリコーン処理酸化亜鉛	20.0
	2. アクリレート/ジメチルシリコーン共重合体 (注1)	12.0
10	3. デカメチルシクロペンタシロキサン	20.0
	4. トリオクタン酸グリセリル	3.0
	5. シリコーン変性ワックス (B-12)	2.0
	6. 架橋型ポリエーテル変性シリコーン (注2)	5.0
	7. ポリエーテル変性シリコーン (注3)	1.0
15	8. アルキル・ポリエーテル共変性シリコーン (注4)	1.0
	9. メトキシ桂皮酸オクチル	6.0
	10. クエン酸ナトリウム	0.2
	11. ジプロピレングリコール	3.0
	12. 防腐剤	適量
20	13. 香料	適量
	14. 精製水	26.8

(注1) 信越化学工業 (株) 製: KP-545 (商品名)

(注2) 信越化学工業 (株) 製: KSG-21 (商品名)

(注3) 信越化学工業 (株) 製: KF-6017 (商品名)

(注4) 信越化学工業(株) 製: KF-6026 (商品名)

(製造方法)

A) 成分3を一部と、成分4～9とを加熱混合した。

B) 成分10～12、14を混合し、上記A) で得られた混合物に加えて攪拌  
5 乳化した。

C) 成分1、2および3の残部を上記B) で得られた乳化物に混合分散し、さらに成分13を加えて均一にした。

以上のようにして得られた油中水型タイプのUVカットクリームは、のびが軽くさっぱりとして、べたつきや油感がなく、透明感があり化粧持ちが良く、  
10 温度や経時による変化もなく、使用性も安定性も非常に優れているUVカットクリームであった。

<実施例32>

(UVカット油中水型乳液)

(成分)

質量 (%)

15	1. ジメチルポリシロキサン (6 mm <sup>2</sup> /秒 (25℃))	5.0
	2. 架橋型ポリエーテル変性シリコーン (注1)	5.0
	3. トリオクタン酸グリセリル	2.0
	4. シリコーン変性ワックス (B-12)	1.0
	5. ポリエーテル変性シリコーン (注2)	1.0
20	6. 酸化チタン/デカメチルシクロペンタシロキサン分散物	
	(注3)	30.0
	7. 酸化亜鉛/デカメチルシクロペンタシロキサン分散物	
	(注4)	30.0
	8. ジプロピレングリコール	3.0

9. クエン酸ナトリウム	0. 2
10. 防腐剤	適 量
11. 香料	適 量
12. 精製水	22. 8

5 (注1) 信越化学工業(株) 製: KSG-21 (商品名)

(注2) 信越化学工業(株) 製: KF-6017 (商品名)

(注3) 信越化学工業(株) 製: SPD-T1S (商品名)

(注4) 信越化学工業(株) 製: SPD-Z1 (商品名)

(製造方法)

10 A) 成分1～5を加熱混合した。

B) 成分8～10、12を混合溶解し、上記A) で得られた混合物に加えて攪拌乳化した。

C) 成分6、7、11を上記B) で得られた乳化物に加えて均一にした。

以上のようにして得られた油中水型タイプのUVカット乳液は、のびが軽く

15 さっぱりとして、べたつきや油感がなく、透明感があり化粧持ちが良く、温度や経時による変化もなく、使用性も安定性も非常に優れているUVカット乳液であった。

### <実施例33>

(UVカット水中油型クリーム)

20 (成分)	質量 (%)
1. 架橋型オルガノポリシロキサン (注1)	5. 0
2. イソオクタン酸セチル	5. 0
3. シリコーン変性ワックス (B-11)	1. 0
4. 酸化チタン/デカメチルシクロペンタシロキサン分散物 (注2)	15. 0

	5. ポリエーテル変性シリコーン (注3)	1. 0
	6. ポリエーテル変性シリコーン (注4)	1. 0
	7. アクリル酸アミド系混合物 (注5)	2. 0
	8. プロピレングリコール	5. 0
5	9. メチルセルロース (2%水溶液) (注6)	5. 0
	10. 防腐剤	適 量
	11. 香料	適 量
	12. 精製水	60. 0

(注1) 信越化学工業 (株) 製: KSG-18 (商品名)

10 (注2) 信越化学工業 (株) 製: SPD-T1S (商品名)

(注3) 信越化学工業 (株) 製: KF-6027 (商品名)

(注4) 信越化学工業 (株) 製: KF-6011 (商品名)

(注5) セピック製: セピゲル 305 (商品名)

(注6) 信越化学工業 (株) 製: メトロース SM-4000 (商品名)

15 (製造方法)

A) 成分5～8および10、12を混合した。

B) 成分1～3を加熱混合し、上記A) で得られた混合物に加えて攪拌乳化した。

C) 成分4を上記B) で得られた乳化物に加え、さらに成分9、10を加えて

20 均一にした。

以上のようにして得られた水中油型タイプのUVカットクリームは、のびが軽くさっぱりとして、べたつきや油感がなく、透明感があり化粧持ちが良く、温度や経時による変化もなく、使用性も安定性も非常に優れているUVカットクリームであった。

## 産業上の利用可能性

本発明によれば、1分子に1個以上のSi-H結合を有する一般的なハイドロジェンシリコーンとの反応性を有するオレフィン系ワックスおよびそれを使用した高融点で安価なシリコーン変性オレフィン系ワックスを提供することができる。本発明の新規なシリコーン変性ポリオレフィン系ワックスは、非反応性のオレフィン系ワックスとシリコーンの混合物と比較して、同等以上の成形性、離型性、潤滑性を示すとともにより良好な印刷性、シール特性を示す。よって、耐熱性、ガス透過性、電気特性などシリコーンとしての特性と熱可塑性樹脂の性能を併せ持つことができる。単独での使用や他の熱可塑性樹脂、有機ゴム、エンジニアリングプラスチックなどに添加することにより表面滑り性、離型性、耐衝撃性などの可能であり、エラストマーの相容化剤としても有効である。食品包装用フィルムとして使用されているポリエチレンやポリプロピレンに添加することにより、フィルムの透明性を損なわないブロッキング防止剤として潤滑性の向上が期待できる。

また、フリーなシリコーンオイルを含有しないので、これを複写機等に使用するトナーに内添させても経時でトナーが凝集するということがない。従って、本発明のシリコーン変性ポリオレフィン系ワックスはトナーに内添するワックスとして特に有用であり、その他、カーワックス等の表面改質剤、種々の用途の離型剤、あるいは滑性付与剤としても使用可能である。また、このシリコーン変性ポリオレフィン系ワックスは融点が高い上、油剤、特にシリコーン油を滑らかな固形状にできるため、化粧品に配合した場合、使用性に優れたものが得られることがわかった。本発明の化粧品は、塗布時のべたつきや重さがなくさらさらして、のび広がりも軽く、後肌も、さらっとしたなめらかな感触を有

するなど、軽い延びとさっぱりした使用感を有し、更に汗、水に強い撥水性を持つと共に、塗布する事により、適度に水分の蒸散を損なうことなく、柔軟性、平滑性、エモリエント効果を付与し、自然なつやを与える等、使用性に優れ、良好な経時安定性を有するものである。

## 請 求 の 範 囲

1.

(i) エチレンと少なくとも1種のジエンとを共重合して得られる共重合体(A 1)、またはエチレンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンから選ばれる少なくとも1種のオレフィンと少なくとも1種のジエンとを共重合して得られる共重合体(A 2)であり、

(ii) 1分子あたりの不飽和基含有量が0.5～3.0個であり、

(iii) 密度が870～980 kg/m<sup>3</sup>であり、

10 (iv) 融点が70～130℃であり、

(v) 数平均分子量が400～5,000であり、

(vi) 重量平均分子量と数平均分子量との比(Mw/Mn)が4.0以下であることを特徴とするオレフィン系ワックス。

15 2.

(i) エチレンとビニルノルボルネン(5-ビニルビシクロ[2.2.1]ヘプト-2-エン)とを共重合して得られる共重合体(A 3)、またはエチレンと炭素数3～12の $\alpha$ -オレフィンから選ばれる少なくとも1種のオレフィンとビニルノルボルネンとを共重合して得られる共重合体(A 4)であり、

20 (ii) 1分子あたりの不飽和基含有量が0.5～2.0個であり、

(iii) 密度が900～980 kg/m<sup>3</sup>であり、

(iv) 融点が100～130℃であり、

(v) 数平均分子量が400～5,000であり、

(vi) 重量平均分子量と数平均分子量との比(Mw/Mn)が4.0以下で

あることを特徴とするオレフィン系ワックス。

3.

前記オレフィン系ワックスがメタロセン系触媒を用いて製造されたものであることを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載のオレフィン系ワックス。

4.

請求の範囲第1項～第3項のいずれかに記載のオレフィン系ワックス (A) と1分子に1個以上のSi-H結合を有するハイドロジェンシリコーンを、触媒存在下で付加反応させることにより得られることを特徴とするシリコーン変性オレフィン系ワックス。

5.

請求の範囲第4項に記載のシリコーン変性オレフィン系ワックス (B) 5～95質量%と油剤 (C) 95～5質量%とからなることを特徴とするシリコーン系室温固化組成物。

6.

請求の範囲第4項に記載のシリコーン変性オレフィン系ワックス (B) および／または請求の範囲第5項に記載のシリコーン系室温固化組成物 (D) を含有することを特徴とする化粧品。



7.

前記油剤（C）の少なくとも一部が常温で液状であることを特徴とする請求の範囲第6項に記載の化粧料。

5 8.

前記油剤（C）の少なくとも一部が融点50度以上の固形油剤であることを特徴とする請求の範囲第6項または第7項に記載の化粧料。

9.

10 前記油剤（C）の少なくとも一部が、下記式



（式中、 $R^1$ は、水素原子、炭素数1～30のアルキル基もしくはフッ素置換アルキル基、炭素数6～30のアリール基、または炭素数7～30アラルキル基を表し、 $a$ は $0 \leq a \leq 2.5$ である。）

15 で示される直鎖状、分岐状または環状のシリコーン油であることを特徴とする請求の範囲第6項～第8項のいずれかに記載の化粧料。

10.

20 前記油剤（C）の少なくとも一部がフッ素原子またはアミノ基を有することを特徴とする請求の範囲第6項～第9項のいずれかに記載の化粧料。

11.

さらに、水（E）を含有することを特徴とする請求の範囲第6項～第10項のいずれかに記載の化粧料。

1 2.

さらに、分子構造中にアルコール性水酸基を有する化合物（F）を含有することを特徴とする請求の範囲第6項～第11項のいずれかに記載の化粧料。

5

1 3.

分子構造中にアルコール性水酸基を有する前記化合物（F）が、水溶性の一価のアルコールおよび／または水溶性の多価アルコールであることを特徴とする請求の範囲第12項に記載の化粧料。

10

1 4.

さらに、水溶性または水膨潤性高分子（G）を含有することを特徴とする請求の範囲第6項～第13項のいずれかに記載の化粧料。

15

1 5.

さらに、粉体（H1）および／または着色剤（H2）を含有することを特徴とする請求の範囲第6項～第14項のいずれかに記載の化粧料。

1 6.

20

前記粉体（H1）および／または着色剤（H2）の少なくとも一部が、ジメチルポリシロキサンを架橋した構造を有する架橋型球状ジメチルポリシロキサン微粉末、架橋型球状ポリメチルシルセスキオキサン微粉末、疎水化シリカ、または架橋型球状ポリシロキサングム表面をポリメチルシルセスキオキサン粒子で被覆して得られる微粉末であることを特徴とする請求の範囲第15項に記

載の化粧料。

17.

前記粉体（H1）および／または着色剤（H2）の少なくとも一部が、フッ素原子を有することを特徴とする請求の範囲第15項または第16項に記載の化粧料。

18.

さらに、界面活性剤（I）を含有することを特徴とする請求の範囲第6項～第17項のいずれかに記載の化粧料。

19.

前記界面活性剤（I）が、分子中にポリオキシアルキレン鎖を有する直鎖状もしくは分岐状のシリコンおよび／またはポリグリセリン鎖を有する直鎖状もしくは分岐状のシリコンであることを特徴とする請求の範囲第18項に記載の化粧料。

20.

前記界面活性剤（I）の親水性－親油性バランス（HLB）が2～8であることを特徴とする請求の範囲第18項または第19項に記載の化粧料。

21.

さらに、架橋型オルガノポリシロキサン（J）を含有することを特徴とする請求の範囲第6項～第20項のいずれかに記載の化粧料。

## 2 2 .

前記架橋型オルガノポリシロキサン (J) が、粘度が  $0.65 \sim 10.0 \text{ m}^2/\text{秒}$  ( $25^\circ\text{C}$ ) の低粘度シリコーンを自重以上の量を含んで膨潤する架橋型オルガノポリシロキサンであることを特徴とする請求の範囲第 2 1 項に記載の化粧品。

## 2 3 .

前記架橋型オルガノポリシロキサン (J) が、該オルガノポリシロキサン (J) のケイ素原子に直接結合した水素原子と分子中に 2 つ以上のビニル性反応部位を有する架橋剤とが反応することにより、架橋構造を形成し得ることを特徴とする請求の範囲第 2 1 項または第 2 2 項に記載の化粧品。

## 2 4 .

前記架橋型オルガノポリシロキサン (J) が、ポリオキシアルキレン、ポリグリセリン、アルキル、アルケニル、アリールおよびフルオロアルキルからなる群から選択される少なくとも 1 つの部位を架橋分子中に含有することを特徴とする請求の範囲第 2 1 項～第 2 3 項のいずれかに記載の化粧品。

## 2 5 .

さらに、シリコーン樹脂 (K) を含有することを特徴とする請求の範囲第 6 項～第 2 4 項のいずれかに記載の化粧品。

26.

前記シリコーン樹脂 (K) がアクリルシリコーン樹脂であることを特徴とする請求の範囲第25項に記載の化粧料。

5 27.

前記シリコーン樹脂 (K) が、ピロリドン、長鎖アルキル、ポリオキシアルキレン、フルオロアルキルおよびカルボン酸などのアニオンからなる群から選択される少なくとも1つの部位を分子中に含有するアクリルシリコーン樹脂であることを特徴とする請求の範囲第26項に記載の化粧料。

10

28.

前記シリコーン樹脂 (K) が、1官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物 (MQ)、1官能性シロキシ基と2官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物 (MDQ)、1官能性シロキシ基と3官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物 (MDT)、  
15 および1官能性シロキシ基と2官能性シロキシ基と3官能性シロキシ基と4官能性シロキシ基とからなるシリコーン網状化合物 (MDTQ) から選択されるシリコーン網状化合物であることを特徴とする請求の範囲第25項に記載の化粧料。

20

29.

前記シリコーン樹脂 (K) が、ピロリドン、長鎖アルキル、ポリオキシアルキレン、フルオロアルキルおよびアミノ基からなる群から選択される少なくとも1つの部位を分子中に含有するシリコーン網状化合物であることを特徴とす

る請求の範囲第 25 項または第 28 項に記載の化粧品。

30.

構成成分の少なくとも一部として、請求項 6 ～ 29 のいずれかに記載の化粧品を含有することを特徴とするスキンケア化粧品。

31.

構成成分の少なくとも一部として、請求項 6 ～ 29 のいずれかに記載の化粧料を含有することを特徴とするメイクアップ化粧品。

10

32.

構成成分の少なくとも一部として、請求項 6 ～ 29 のいずれかに記載の化粧料を含有することを特徴とする頭髮化粧品。

15 33.

構成成分の少なくとも一部として、請求項 6 ～ 29 のいずれかに記載の化粧料を含有することを特徴とする制汗剤化粧品。

34.

20 構成成分の少なくとも一部として、請求項 6 ～ 29 のいずれかに記載の化粧料を含有することを特徴とする紫外線防御化粧品。

35.

形状が、液状、乳液状、クリーム状、固形状、ペースト状、ゲル状、粉末状、

プレス状、多層状、ムース状、スプレー状、スティック状またはペンシル状であることを特徴とする請求項 6 ～ 3 4 のいずれかに記載の化粧品。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP03/13265

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> C08F210/18, C08F8/00, A61K7/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> C08F210/00-210/18, C08F8/00-8/50, A61K7/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 9-95514 A (Northwestern University), 08 April, 1997 (08.04.97), Full description & EP 739910 A2 & US 5578690 A1	1-35
A	JP 2000-226411 A (Kao Corp.), 15 August, 2000 (15.08.00), Full description (Family: none)	1-35
A	JP 7-179718 A (Kao Corp.), 18 July, 1995 (18.07.95), Full description (Family: none)	1-35

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
13 November, 2003 (13.11.03)

Date of mailing of the international search report  
25 November, 2003 (25.11.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/13265

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 6-49129 A (Hoechst AG.), 22 February, 1994 (22.02.94), Full description & EP 571882 A1                      & EP 572158 A2 & JP 5-317480 A                      & JP 5-326469 A & EP 572135 A3                      & JP 6-104739 A & JP 6-112175 A                      & EP 602509 A2 & JP 6-181192 A                      & JP 6-216096 A & JP 6-293805 A                      & US 5445996 A1 & US 5597341 A1                      & US 5811998 A1 & US 5914275 A1                      & US 5948205 A1 & JP 11-265863 A                      & JP 11-265865 A & JP 2001-358104 A	1-35

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08F210/18, C08F8/00, A61K7/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08F210/00-210/18, C08F8/00-8/50, A61K7/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 9-95514 A(ノースウエスタン ユニバーシティ)1997. 04. 08, 全明細書 & EP 739910 A2 & US 5578690 A1	1-35
A	JP 2000-226411 A(花王株式会社)2000. 08. 15, 全明細書 (ファミリーなし)	1-35

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 11. 03

国際調査報告の発送日

13. 11. 03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

三谷 祥子

4 J

9362

電話番号 03-3581-1101 内線 3494



C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 7-179718 A(花王株式会社)1995. 07. 18, 全明細書 (ファミリーなし)	1-35
A	JP 6-49129 A(ヘキスト・アクチェンゲゼルシャフト)1994. 02. 22, 全明細書 & EP 571882 A1 & EP 572158 A2 & JP 5-317480 A & JP 5-326469 A & EP 572135 A3 & JP 6-104739 A & JP 6-112175 A & EP 602509 A2 & JP 6-181192 A & JP 6-216096 A & JP 6-293805 A & US 5445996 A1 & US 5597341 A1 & US 5811998 A1 & US 5914275 A1 & US 5948205 A1 & JP 11-265863 A & JP 11-265865 A & JP 2001-358104 A	1-35